PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room

CP2/5C24 Arlington, VA 22202

Date of mailing (day/month/year) 27 April 2001 (27.04.01)	in its capacity as elected Office		
International application No.	Applicant's or agent's file reference		
PCT/JP00/05881	NTK00-1287		
International filing date (day/month/year)	Priority date (day/month/year)		
30 August 2000 (30.08.00)	31 August 1999 (31.08.99)		
Applicant			
SENZAKI, Toshihide et al			

_	
1.	The designated Office is hereby notified of its election made:
	X in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:
	19 February 2001 (19.02.01)
	in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:
2.	The election X was
	was not
	made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

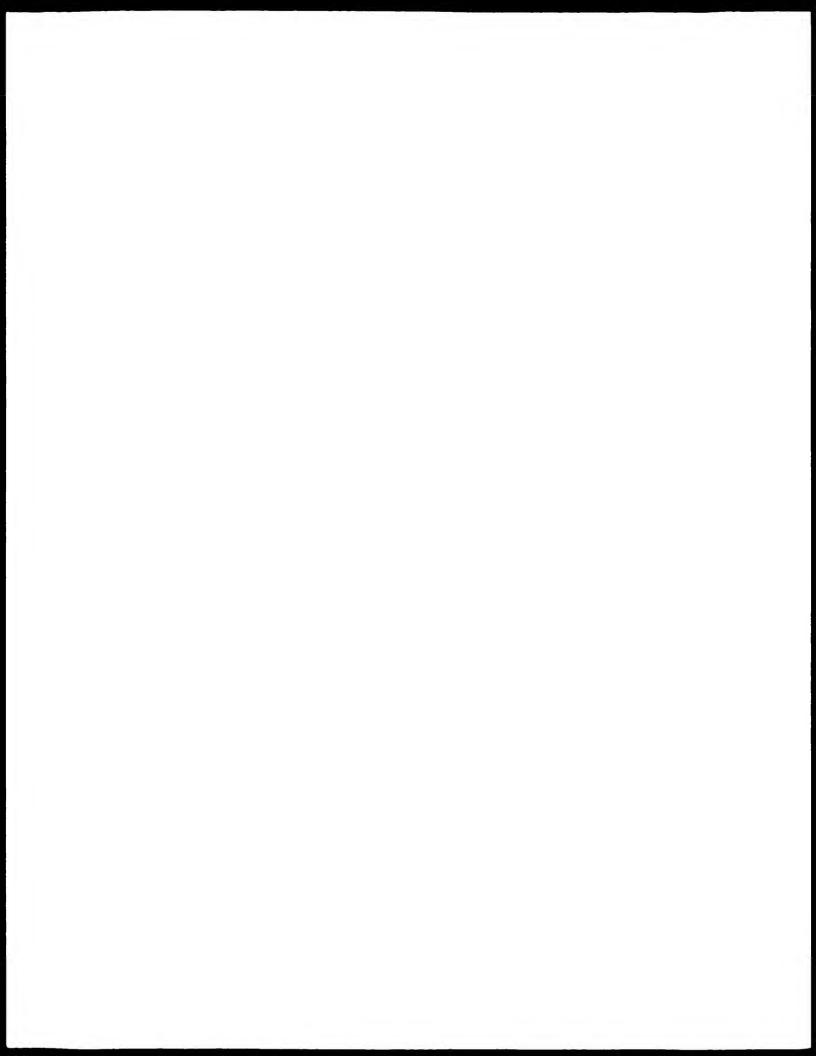
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

R. Forax

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35



(19) 世界知的所有権機関 国際事務局



(43) 国際公開日 2001 年3 月8 日 (08.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号 WO 01/16199 A1

(51) 国際特許分類⁷: C08C 14/04、 C08L 61/34、C09D 161/34、C09J 161/34

(21) 国際出願番号:

PCT/JP00/05881

(22) 国際出願日:

2000年8月30日(30.08.2000)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願平11/244432 1999年8月31日(31.08.1999) JP 特願2000/200630 2000年7月3日(03.07.2000) JP

- (71) 出願人 /米国を除く全ての指定国について): 新日 鐵化学株式会社 (NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁 目21番11号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 /米国についてのみ): 千崎利英 (SENZAKI, Toshihide) [JP/JP]. 今村高弘 (IMAMURA, Takahiro) [JP/JP]; 〒804-8503 福岡県北九州市戸畑区 大字中原先の浜 46番地の80 新日鐵化学株式会社 総 合研究所内 Fukuoka (JP).

- (74) 代理人: 成瀬勝夫、外(NARUSE, Katsuo et al.); 〒 105-0003 東京都港区西新橋2丁目11番5号 セントラ ル新橋ビル5階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) 指定国 /広域/: ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: AROMATIC OLIGOMER AND USE THEREOF

√(54) 発明の名称: 芳香族オリゴマーとその用途

(57) Abstract: An aromatic oligomer represented by the following formula (1): $(A-F)_n$ -A (wherein A is a segment comprising (a) 30 to 90 wt.% bi- or tricyclic aromatic compound and (b) 10 to 70 wt.% phenol compound; F is methylene or a combination of methylene with CH_2OCH_2 -; and n is a number of 1 to 100). This aromatic oligomer is obtained by reacting a polycyclic aromatic compound such as naphthalene or benzothiophene with a phenol and with formaldehyde or a derivative thereof in the presence of an acid catalyst. This aromatic oligomer is odorless and usable in various applications. In particular, when incorporated in a rubber, resin, etc., the oligomer is highly effective as a tackifier in a wide temperature range or is highly effective in imparting vibration-damping properties.



(57) 要約:

本発明は、下記式(1) (A-F)_n-A (1)

(但し、式中Aは(a) 2 又は3環の芳香族化合物30~90重量%及び(b) フェノール類10~70重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと・CH2OCH2ーである。nは1~100の数である。)で表わされる芳香族オリゴマーである。この芳香族オリゴマーは、ナフタレンやベンゾチオフェン等の多環芳香族化合物とフェノール類とホルムアルデヒド類を、酸触媒の存在下で反応させることにより得られる。この芳香族オリゴマーは、臭気のないオリゴマーであり、各種用途に使用され得る。特に、ゴム、樹脂等に配合して広い温度範囲で優れた粘着付与剤としての性能を高度に発現させたり、優れた制振性付与剤としての性能を高度に発現させたりすることができる。

明細書

芳香族オリゴマーとその用途

技術分野

本発明は、芳香族オリゴマー及びその用途に関する。本発明の芳香族オリゴマーは、樹脂、ゴム等に配合されて、接着剤、粘着剤、進料等に粘着性を付与するための粘着付与剤として有用である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、樹脂、ゴム等に配合されて、建材、電化製品、自動車、橋梁、モーター、発電機、エンジン等の振動や騒音が問題となる分野において、室温から170℃程度までの領域で効果のある制振性付与剤として有用である。

背景技術

フェノール類とホルムアルデヒド類を酸触媒の存在下で反応させて得られる樹脂は、フェノール樹脂あるいはノボラック樹脂としてよく知られている。また、キシシン等の芳香族炭化水素とホルムアルデヒド類を酸触媒の存在下で反応させて得られる樹脂は、炭化水素樹脂としてよく知られている。更に、インデンークマロン樹脂や石油樹脂も炭化水素樹脂として知られているが、この場合はインデン、クマロンやシクロペンタジエン自体がオレフィン結合を有するため、ホルムアルデヒド類は使用されない。

日本特許(JP)特公昭53-24973号公報(B)には、芳香族油とホルムアルデヒド類との酸触媒の存在下で反応させて得られた芳香族油樹脂を塗料配合材として使用することが記載されている。また、特公昭5

9-52887号公報、特開平7-242719号公報(A)、特開平8-157571号公報には、フェノール樹脂にサフタンン、メチルサフタンン、アセナフテンを含有させた樹脂組成物が記載されている。

|ホットメルト系接着剤、エマルジョン系接着剤、感圧接着剤等の各種の 粘接着剤や塗料等には接着強度を向上させ、初期接着強度を高めるため粘 着付与剤が添加されることが多い。例えば、特開平10-195047号 公報では、アクリルエマルション系接着剤に各種の粘着付与樹脂を活加す ることを教えている。また、特開平10-158626号公報や特開平6 - 145626号公報では、SBR系プロック共重合体やこれもを水添変 成又はエポキン変成ブロック共重合体系ホットメルト接着剤に、各種の粘 着付与樹脂を添加することを教えている。更に、WO95~12623号 公報では、アプリル系感圧接着剤に、各種の粘着付与樹脂を添加すること を教えている。これらに記載された粘着付与剤は比較的共通しており、イ ンデンークマコン樹脂、石油樹脂、ロジン系樹脂、キシレン樹脂、フェノ ール樹脂、テルベン系樹脂、スチレン系樹脂等である。これその樹脂は、 基材となる樹脂、ゴム等に対する組合せの適合性、使用温度等の使用条件、 溶媒の有無等で適宜選択されて使用されるが、接着力向上作用、初期接着 強度向上作用等の他、ホットメルト接着剤の場合は、使用温度での異臭が 発生が抑制されることや安価であることなどが要望されている。

炭化水素樹脂を使用し、制振性をコントロールする方法は各種提案されている。たとえば、市販の石油樹脂や、市販のクマロンーインデン樹脂を使用するもの(特開昭63-11980号公報、特開昭62-141069号公報)や、市販のボリブテン、テルペン樹脂若しくは変性ロジンを使用したもの(特開平2-49063号公報/が報告されている。また、多

環芳香族樹脂を使用した例としては、アルキルバンゼンーメチルサフタレン樹脂を使用したもの(特開平 7 - 9 0 1 3 0 号公報)がある

ゴム、樹脂、瀝青材料等の基材に配合して制振性を向上させる制振性付与剤は、これを配合した制振材のtan b (損失係数)が使用領域で大きいこと、tan b の温度依存性が小さいことが望まれる。しかし、この性質は相反することが多いことが知られている。

本発明の目的は、臭気の低い又は臭気の発生しない、新規芳香族オリゴマーを提供することにある。また、本発明の目的は、簡易に得られる制振性付与剤を提供することを目的とする。本発明の他の目的は、粘着付与剤としての性能を高度に発現させ、多環系の粘着付与剤を提供することにある。また、本発明の目的は、広い温度範囲で優れた制振性能を発揮する制振性付与剤を提供することを目的とする。

発明の開示

本発明は、下記式(1)

$$(A - F)_{n} - A \qquad (1)$$

(但し、式中Aは(a)2~4環の芳香族化合物30~90重量%及び(b)フェノール類10~70重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと・ CH_2OCH_2 ーである。nは1~100の数である。)で表わされる芳香族オリゴマーである。

また、本発明は、含酸素率が20%以下である前記芳香族オリゴマーである。更に、本発明は、前記芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。

更に、本発明は、ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、

アセナフテン、マルオンン、アントラセン、フェナンスンン、ピンン、ペングチナフェン及びアルオランテンから選ばれる1種又は2種以上の芳香族化合物とフェノール及びアルキルフェノールから選ばれる1種又は2種以上のフェノール類と、ホルマリン、ホルムアルデヒド及びパラホルムアルデヒドから選ばれる1種又は2種以上のホルムアルデヒド類を、反応させて得られる芳香族オリゴマーであって、軟化点が50~180℃である前記の芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂である。

更にまた、本発明は、前記の芳香族オリコマースは芳香族オリゴマー樹脂を有効成分とする粘着性付与剤又は制振性付与剤である。

以下、芳香族オリゴマースはそれを主成分とする芳香族オリゴマーの製造方法の説明をしつつ、芳香族オリゴマーの発明についても説明する。なお、芳香族オリゴマーの製造方法の発明で得られる芳香族オリゴマーは、純粋な原料を使用しない限り、一般に混合物であって、一般式(1)で表わすことのできない樹脂を含むことがあるが、主成分、すなわち50%以上、好ましくは80%以上は、一般式(1)で表わされる樹脂である。なお、重量%を意味する。また、芳香族オリゴマー中の成分とは、芳香族オリゴマー中に存在するときの単位又は基についても、単に芳香族化合物、フェノール類のようにいうことがある。また、前記芳香族オリゴマーを主成分とする樹脂、すなわち50%以上、好ましくは70%以上、より好ましくは80%以上を含む樹脂を芳香族オリゴマー樹脂という、しかし、説明の簡便化のため、特に矛盾が生でない限り、「芳香族オリゴマー」は、芳香族オリゴマーだけではなく、

芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂を含む意味に解される。

考香族化合物としては、好ましくはナフタンン以上の沸点を有する化合物ではこれらの混合物が望ましい。具体的には、炭素 5~6 員環、酸素を環構成元素として1個含む酸素一炭素 5~6 員環とは硫黄を環構成元素として1個含む硫黄一炭素 5~6 員環から選ばれる芳香族環に1個以上の環が結合した化合物であり、好ましくは芳香族環が2~4個縮合した縮合環である。また、これに炭素数 8 以下のアルキル基が1~5 個程度置換したものなどでもよい。

有利には、多環芳香族炭化水素であり、更に好ましては、ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナフテン、フルオレン、アントラセン、フェナンスンン、ピレン及びフルオランテン等の化合物であり、特に好ましくは、ナフタレン、メチルナフタンン、ジメチルナフタレンである。また、この他、ペンゾチオフェンも好ましいものとして挙げられる。これらは高純度品であってもよいが、これらを主として含む芳香族炭化水素油等の芳香族油であってもよい、芳香族炭化水素油としては、ナフタレン油、メチルナフタレン油、中油等に該当する溜分や、これらの溜分から主たる含有成分を蒸留等で回収して得られる中間製品や残油がある。

芳香族炭化水素油は、芳香族炭化水素が主成分であることはもちろんであるが、N、S、O等を環構成成分として含む小テロ芳香族化合物や、これらを構成成分として含む官能基を有する芳香族化合物が含まれらる他、反応性のない脂肪族炭化水素等が含まれてもよい。好ましくは、2~3環の芳香族炭化水素が80%以上であり、ナフタレン又はアルキルナフタレン等がその70%以上のものである。なお、未精製の芳香族炭化水素油中

にはアエノール類が含有されることがありうるが、これはアエノール類と して計算する。

本発明で使用するホルムアルデヒト類は、反応系でホルムアルデヒドを 生成するものであればよく、ホルムアルデヒト自体、ホルマリン、パラホ ルムアルデヒド等が使用できるが、パラホルムアルデヒドが有利である。

本発明で使用するフェノール類は、フェノールの他、クレゾール、キシレノール、エーフチルフェノール等のアルキルフェノール、レゾルシン、ピロガロール等の多価フェノール、ナフトール等の多環芳香族とドロキシ化合物などが使用できるが、フェノール、炭素数6以下の低級アルキルフェノール等の1価のフェノールが反応性、オリゴマーの物性などの面から望ましい。なお、本発明でいう芳香族化合物として、フェノール類は計算されず、フェノール類として計算される。

本発明の反応でする触媒は酸触媒であり、酸触媒としては、硫酸、燐酸、塩酸等の無機酸、しゅう酸、トルエンスルホン酸等の有機酸、シリカーアルミナ、ゼオライト、イオン交換樹脂、酸性白土等の固体酸などが使用できるが、しゅう酸やトルエンスルホン酸等の有機酸が好ましい。なお、しゅう酸のような熱分解性の触媒であれば、これを除去する操作が省略できるという効果もある。

(a) 芳香族化合物、(b) フェノール類及び(c) ホルムアルデヒド類の使用割合は、これ以外の芳香族化合物の含有量により多少異なるが、次のような割合である。なお、ホルムアルデヒド類のモル比は、ホルムアルデヒド換算で計算したものである。(c) / (a) + (b) (モル比) は、0.1~0.9、好ましくは0.2~0.7、より好ましくは0.4~0.7である。(b) / (a) (重量比) は、10/90~70/30~90、

好ましくは30メ70~50/50である。

ホルムアルデヒド類は、芳香族オリゴマーの分子量を上げるためと、ナフタレンを初めとする芳香族化合物の反応率を高めるために必要であるが、多すぎるとゲル化したり、末端メチョール基が多量に残存する恐れが増大する。フェノール類は、芳香族オリゴマーの分子量を上げるために有効であるばかりでなく、適度の極性を与え、金属材料への粘接着性等を改良する作用を有するが、多すぎると炭化水素樹脂としての特性が失われる。芳香族化合物は、芳香族オリゴマーの極性を適度に調整し、SBR等の他の樹脂や溶媒との相溶性を高めたりする作用を有する。

酸触媒の使用量は、酸触媒の種類によって異なるが、一般に反応原料の 0.5~20重量%程度であり、しゅう酸の場合は、5~10重量%程度 が好ましい。

反応条件は、使用する原料、触媒によって異なるが、反応温度が50~180℃、反応時間が0.5~5時間程度が一般的である。この反応では、ホルムアルデヒド類と、芳香族化合物、フェノール類等との反応が生じ、フェノール類が少ないか、存在しない場合は、炭化水素樹脂又はフェノール類変性炭化水素樹脂のようなオリゴマーが生成する。フェノール類を反応系に多量に存在させると、炭化水素変性ノボラック樹脂のようなオリゴマーが生成する。また、溶媒は必要により使用することができる。

反応終了後、これを蒸留にかけ、まず水やホルムアルデヒド等の低沸点物を溜出させ、次いで減圧にして200~250~300℃程度まで昇温して、未反応の原料やその他の溜分を溜出させる。 残留物は芳香族オリゴマーである。なお、反応終了後、必要により触媒除去処理を水洗等により行ってもよく、この場合は反応の進行はここで停止し、行わない場合は蒸

留中も反応が一部進行する。 芳香族化合物としてサマタレンスはメチルナフタレン含有油を過剰に使用した場合、未反応の原料として回収されたナフタレン 溜分からは、これを晶析では洗浄して精製サフタレンを得ることができる。また、メチルナフタレン 割分からは、蒸留では洗浄して精製メチルナフタレンを得ることができる。

このようにして得をれる芳香族オリゴマーは、上記一般式(1)で表されるオリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。式中、Aは(a)アルキル置換又は非置換の2又は4環の芳香族化合物及び(b)フェノール類を主とする成分であり、(b) // (a) の重量比が 1 0 // 9 0 \sim 3 0 // 7 0 であり、F はメチレン又はメチレンと一 C H $_2$ O C H $_2$ 一である。好ましくは、F は 1 0 0 モル%又は 9 0 モル%以上、より好ましくは 9 5 モル%以上がメチレンであることがよいが、用途によっては 2 0 \sim 3 0 モル%か - C H $_2$ O C H $_2$ 一であってもよい。

nは1~100の数であり、好ましくは数平均が2~20の範囲である。 好ましい数平均分子量は300~1000の範囲であり、重量平均分子量は500~2000の範囲であり、その比は15~3の範囲である。また、この芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂は、は、軟化点が50~180℃、好ましくは70~160℃の範囲にあることがよい。軟化点が低すぎると臭いが生じることがあり、高すぎると相溶性や粘着付与性が低下する。なお、芳香族オリゴマー王成分とする芳香族オリゴマー樹脂は、芳香族化合物として単環又は3環以上の化合物を2~3環の芳香族化合物と共に少量使用した場合や、反応条件を変化させて式(1)で表される化合物以外の化合物が少量副生する場合等に得られる。

また、この芳香族オリゴマーは、触媒にシュウ酸を使用し、高温処理し

たものは、ボルムアルデヒド類由来の酸素はほぼ完全に系外へ脱離してしまうことが判明した。一方、硫酸法でマイルドな条件下で反応を行うと、ボルムアルデヒド類由来の酸素が残ってしまうことが判明した。これは、メチレン結合で芳香環がつながるか、一CH2O-CH2-などのエーテル結合で芳香環がつながるかの差異によるものと考えられる。本発明の芳香族オリゴマーは、エーデル結合に由来する酸素含有率が3wt%以下、好ましくは1wt%以下であることが望ましく、アルキルフェノール等のフェノール類に由来する酸素を含めた全酸素含有率が20wt%以下、好ましくは15wt%以下であることがよい。

本発明の芳香族オリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂は、粘着性付与剤としてばかりでなく、制振性付与剤として優れた性能を示すが、制振性付与剤としてより優れた性能を生じさせるためには、次のような芳香族オリゴマーであることがよい。

この芳香族オリゴマーは、芳香族化合物原料とフェイール類とホルムアルデヒド類を反応原料として得ることができるが、芳香族化合物原料は、サフタレン、ベンゾチオフェンから選ばれる1種又は2種の2環の芳香族化合物を主とする原料であることがよく、かかる原料としては、サフタレン又はベンゾチオフェンのみからなるもの、両者からなるもの、これらと少量のその他の芳香族化合物とからなるものなどがある。

前記その他の芳香族化合物としては、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナフテン、アルオレン、アントラセン、フェナンスレン等の化合物が挙げられ、好ましくは、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン等の2環の芳香族化合物である。式(1)で表わされる樹脂を得るための芳香族化合物とフェノール類の有利な組成は、ナフタレンとベンゾチオフ

エンの多環芳香族化合物の合計が30~90%、好ましくは60~80%、フェノーの類が20~40%からなるものであり、少量のメチルナフタレン等のその他の芳香族化合物が含有され得る。多環芳香族化合物中のナフタレンとペングナオフェンの割合は、ナフタレン10~100%、好ましくは30~97%、ペンソチオフェン0~100%、好ましくは10~70%である。

ナフタレンを 9 0 %以上含有する芳香族炭化水素油又はペンゾチオフェンを 1 0 %以上含有する芳香族油は、高純度品であってもよいが、これらを主として含む芳香族炭化水素油等であってもよい。芳香族炭化水素油としては、タール油系のナフタレン油、メチルナフタレン油、中間油等に該当する溜分や、これらの溜分から主たる含有成分を蒸留等で回収して得られる中間製品や残油がある。

ナフタレンを90%以上含有する芳香族炭化水素油は、精製ナフタレンであってもよいが、好ましい例としては、95%級ナフタレン等が挙げられる。これには、その他の成分としてベンゾチナフェンやメチルナフタレン等が含まれ得る。

また、ペンゾチオフェンを10%以上含有する芳香族油は、好ましくは、ベンゾチオフェンが30%以上であり、芳香族炭化水素が30%以上であり、ナフタレンか25%以上のものである。好ましい例としては、粗ナマタレンから精製ナフタレンを得る際に副生するベンゾチオフェンが10~50%に濃縮され、ナフタレンが70~40%に減少した副生油が挙げられる。

フェノール類及びホルムアルデヒド類の種類とこれらの配合割合は、前 記と同様な種類、割合が使用できる。また、触媒や反応条件も前記と同様

10

な条件が使用できる。そして、多環芳香族化合物は、制振性を同上させ、 芳香族オリゴマーの極性を適度に調整し、SBR等の他の樹脂やゴムや溶 媒との相溶性を高めたりする作用を有する。

このようにして得られる芳香族オリゴマーは、上記式(1)で表される芳香族オリゴマー又はこれを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂である。芳香族オリゴマー又は芳香族オリコマー樹脂の好ましい数平均分子量は300~1000範囲であり、重量平均分子量は500~2000範囲であり、その比は15~3の範囲である。また、この芳香族オリゴマー又は芳香族オリゴマー樹脂は、軟化点が50~180℃、好ましくは70~160℃の範囲にあることがよい。軟化点が低すぎたり、高すぎたりすると良好な制振性を示す温度範囲が常用使用範囲からつれたり、相溶性が低下したりする。

図面の簡単な説明

図1及び図2は、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与材として使用 した時のtan δ と温度の関係を示すグラフである。

発明を実施するための最良の形態

本発明の芳香族オリゴマー(芳香族オリゴマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂を含む。以下同じ。)は、単独若しくは公知の粘着付与剤や他の添加剤と共に粘着付与剤として使用することができる。例えば、クロロプレン、SBR等のゴム系のホットメルト接着剤や酢酸ビニルやボリビニル化合物系のホットメルト型の接着剤やアクリル系の感圧接着剤又は乳化接着剤やエポキン樹脂等の硬化型の接着剤や塗料等に、粘着性を付与ス

は高めるために、粘着付与剤として配合されて使用される。有利には、SBR等のゴム系の接着剤に配合されて使用される。この場合、基材樹脂のゴムは、クロロマレン、SBR等の合成ゴム、天然ゴム、これらを水添等により変成したものなど公知のものが使用でき、その他安定剤、滑剤、充填剤、軟化剤等を接着剤中に配合することができる。粘着付与剤としての芳香族オリゴマーの配合量は、基材のゴム又は樹脂100重量部に対し、50~400重量部、好ましくは100~300重量部の範囲である。

また、本発明の芳香族オリゴマーは、制振性付与剤として使用することができる。この場合、前記芳香族オリゴマーはそのまま使用してもより、精製したり、分子量分画したりしたのち使用してもよい。制振性付与剤として使用される本発明の芳香族オリゴマーは、制振材として使用される樹脂、ゴム、瀝青物等に配合されて使用する。この際、制振材中に本発明の制振性付与剤の他に、公知の制振性付与剤や、カーボンブラック、炭酸カルシウム、酸化チタン、クレー、タルク、マイカ、アルミナ等の充填材、プロセスオイル、酸化防止材等の各種添加剤を配合することができる。

有利には、SBR、ブチルゴム、天然ゴム、ジエン系ゴム、クロコプレン、これらの水添変成ゴム等のゴム又はEVA(エチレン酢酸ビニル樹脂)等の弾性を有する樹脂に、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与剤として10~70%、好ましくは30~60%配合して使用する。また、本発明の芳香族オリゴマーを制振性付与剤として複数組合せて使用すれば、より広い温度範囲において良好な制振性を与えることができる。また、同様に他の制振性付与剤と組合せて使用すれば、他の制振性付与剤と組合せて使用すれば、他の制振性付与剤の欠点を改良することができる。

以下、本発明の実施例を示す。実施例中、%は重量%であり、部は重量

部である。

実施例1

石展系の95%ナワタレン(硫黄分5000ppm)134部、p-ターシャリプチルフェノール68部及び98%ハラホルムアルデヒド34部を、プラスコに住込み、これを110℃保ち、しゅう酸22部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、プラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。200℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。200℃からは100mm目gの減圧にして蒸留を行ない270℃まで昇温し、ナフタレン溜分を溜出させた。ナフタエン溜分は100部であり、その純度は99.9%以上であった。また、フラスコからは、軟化点113.6℃、数平均分子量548、重量平均分子量1459のオリゴマーA120部を得た。

実施例2

石炭系のメチルナフタレン混合物(硫黄分5200ppm) 1 7 6 部、 p ー ターシャリプチルフェノール 8 0 部及び 9 8 %パラホルムアルデヒド 4 4 部を、フラスコに仕込み、これを 1 1 0 ℃に保ち、しゅう酸 2 3 部を添加した。次いで、撹拌しつつ 1 3 0 ℃で 2 . 5 h r 反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。2 0 0 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 2 0 0 ℃からは 1 0 0 m m H g の減圧にして蒸留を行ない 2 7 0 ℃まで昇温し、メチルナフタレン溜分を溜出させた。メチルナフタレン溜分は 1 3 1 部であった。また、フラスコからは、軟化点 1 4 0 . 7 ℃のオリゴマーB 1 3 9 部を得た、

実施例3

石炭系のアントラセン混合物(硫黄分6000ppm) 3 + 0 部、p - 9 - 9 キリブチルフェノール 1 + 0 6 部及び 9 + 8 % ハラホルムアルデヒド 5 + 2 部を、フラスコに仕込み、これを 1 + 0 でに保む、しゅう酸 2 + 8 部を添加した。次いで、撹拌しつつ 1 + 3 + 0 でで 2 + 5 + 1 + 1 反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。2 + 0 + 0 でまでに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。2 + 0 + 0 でからに 1 + 0 + 0 の 個別 の 減圧にして蒸留を行ない 2 + 0 + 0 で まで昇温し、アントラセン溜分を溜出させた。アントラセン溜分は 1 + 0 + 0 で の オリゴマー 1 + 0 + 0 で の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の オリゴマー 1 + 0 + 0 の る の の また。

実施例1~3と同様にして、芳香族化合物及びフェノール類の種類を変えて、オリゴマーD~Hを得た。結果を表上に示す。表中、Nはナフタレンを示し、MNはメチルナフタレンを示し、ANはアントラセンを示し、混合油はこれらを主とする芳香族油留分を示し、Phはフェノールを示し、PTBPはパラターシャリーブチルフェノールを示す。また、含酸素率は、オリゴマーの元素分析値(重量%)であり、実施例1のオリゴマーAは5.4、実施例2のオリゴマーBは6.2、実施例3のオリゴマーCは4.8であった。

【丟1】

ナリコ "	筹香族化合物	251-1	触媒	Мп	M w	軟化	含酸素率
マー		頻				点で	(wt%)
D	N	なし	硫酸	407	993	75.7	13.0
Е	N	Ρh	硫酸	461	916	92.6	5.9
F	α - M N	Ρh	硫酸	399	742	78.3	4.8
G	MN混合油	PTBP	蓚酸	654	1498	120	5.2
Н	AN混合油	PTBP	蓚酸	499	1423	156	3.8

実施例4

SBRに、実施例 $1 \sim 3$ で得られたオリゴマーA~Cを20%又は50%添加した樹脂組成物を、サイズ $150 \times 25 \times 1.5$ mmのSUS304 (JIS G4305準拠) 板 2 枚の間に、接着面積 10×25 mmとなるように入れ、1.7.5 ℃で2分間予熱し、5.0 kgf/cm²の圧力で、1.5 間ブレスして、試験片を調整し、各々島津オートグラフAGS-5.00 A装置を使用して引張りせん断接着力を測定した。なお、試験サンプル調整過程でオリゴマーに起因する異臭は感じられなかった。

比較例1

比較のため、SBRを単独で実施例1と同等の方法で引っ張りせん断接着力を測定した。

比較例2

SBRに市販のキシレン樹脂(三菱瓦斯株式会社製 HP-120)を50%添加した樹脂組成物について、実施例1と同等の方法で引っ張りせん断接着力を測定した。

結果をまとめて表2に示す。

【表2】

オリゴマ	主たる芳香族化合	測定值
	‡ ⁴ 7	(kgf/cm ⁻)
А	ナフタレン	8.0
В	メチルナフタレン	7 5
С	アントラセン	7.0
なし	_	1 6
H P -120	キシンン	4 5

実施例5

石炭系の粗ナフタレン (ナフタレン含有率 96%) を135部、pーターシャドプチルフェノール68部及び92%パラホルムアルデヒド37部を、フラスコに仕込み、これを110℃に保ち、しゅう酸23部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。

反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。 200 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 200 ℃ からは 50 m m H g の減圧にして蒸留を行ない 270 ℃まで昇温し、未反応原料を溜出させた。回収原料留分は 66 部であった。また、フラスコ中に残る樹脂分は、軟化点 110 ℃の芳香族オリゴマー 120 部であった。

この芳香族オリゴマー」とEVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社)を重量比で1:1で使用し、THFを使用して溶液を調製する。次に、この溶液に小さなスプリング(外径5mm、長さ29mm)を含浸後、室温で24時間乾燥してスプリング間隙に樹脂系材料とゴム系材料が混合された皮膜を形成させて、DSA(Dynamic Spring Analysis)法による制振特性評価用試料を調製した。

このようにして調製したサンプル(1)を測定器(株オリエンテック: RHEOBIBRON DDV-II-EP)でマイナス 1 1 0 C から 1 5 0 C の範囲の動粘度を測定し、その結果を $tan \delta$ 一温度として図 1 に示す。 実施例 6

石炭系の粗ナマタレンを晶析して精製ナマタレンを分離して得られる残油 (ベンゾチオフェン含有率 40%、ナマタレン含有率 57%)を135部、pーターシャリブチルフェノール68部及び92%パラホルムアルデヒド37部を、フラスコに仕込み、これを110℃に保ち、しゅう酸23部を添加した。次いで、撹拌しつつ130℃で2.5hr反応を行ない、オリゴマーを生成させた。なお、生成水等の低沸点分は還流させた。

反応終了後、フラスコにコンデンサーを取付け、常圧で蒸留を開始した。 200 ℃までに、水、ホルムアルデヒド等の低沸点物は溜出した。 200 ℃ からは 50 mm H g の減圧にして蒸留を行ない 270 ℃まで昇温し、未反応原料を溜出させた。 回収原料留分は 66 部であった。 また、フラスコ中に残る樹脂分は、軟化点 126 ℃の芳香族オリコマー 151 部であった。

この芳香族オリゴマーKとEVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社)を重量比で1:1の割合で使用し、実施例1と同様にして制振特性評価用サンプル(2)を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果を $tan\delta$ ー温度として図1に示す。

なお、実施例5の芳香族オリゴマーJの含酸素率(wt%)は、5.4%、 実施例6の芳香族オリゴマーKの含酸素率(wt%)は、4.8%であった。 実施例7

実施例もで得られた芳香族オリゴマー」とSBR(タフプレンA、旭化

成工業株式会社製)を重量比で1:1の割合で使用し、実施例1と同様にして制振特性評価用サンブル(3)を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果をtanoー温度として図2に示す。比較例3

芳香族オリゴマーは使用せずに、EVA(エバフレックス220、三井デュポンポリケミカル株式会社製)をTHFを使用して溶液を調製した他は、実施例1と同様にして制振特性評価用サンフル(4)試料を調製し、マイナス110℃から150℃の範囲の動粘度を測定した。その結果を $tan \delta$ 一温度として図1に示す。

比較例 4

芳香族オリゴマーは使用せずに、SBR(タフプレンA、旭化成工業株式会社製)をTHFを使用して溶液を調製した他は、実施例1と同様にして制振特性評価用サンプル(5)を調製し、マイナス110 $\mathbb C$ から150 $\mathbb C$ の範囲の動粘度を測定した。その結果を $tan\delta$ ー温度として図2に示す。

図 1 に示すように E V A 単独のサンプル (4) (比較例 3)は、-5.2 でから 1.6.8 での範囲に $\tan \delta$ 値 =0.120 のなだらかなピークが見られる。一方、実施例 5 の芳香族オリゴマー J を配合したサンプル (1) では、40.6 でに $\tan \delta = 0.530$ の鋭いピークが観察され、制振性を付与できていることが分かる。

更に、実施例6の芳香族オリゴマーKを配合したサンプル(2)では、62.6 ℃に0.245 及び175 ℃に0.409 のヒークが観察され、より高温度領域の制振性が期待できる。

このように本発明の芳香族オリゴマーを選択することで制振性の領域をコントコールすることが可能である。

次に、図 2 に示すように S B R 単独のサンフル (5) (比較例 4) では、-75.4 ℃に 0.05 のの小さいヒークと 96.5 ℃に $\tan\delta$ 値 0.4 0.5 の大きなヒークが見られる。

ー方、実施例7の芳香族オリゴマー」を配合したサンフル (3) では、 100.5℃にtanδ 0.575のヒークが観察され、この温度での制振性を増加させていることが分かる。

このように多環芳香族オリゴマーを選択することで制振性の領域をコントロールすることが可能である。

産業上の利用可能性

本発明の芳香族オリゴマーは、臭気もしないため、使用環境の面からも有用である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、ホットメルト接着用途等の粘着付与剤として優れる。更に、本発明の芳香族オリゴマーは、優れた制振性を与えることができる。また、本発明の芳香族オリゴマーは、比較的容易に得ることが可能である。また、本発明の芳香族オリゴマーは、単独で又はこれを組合せて使用すれば、広い温度範囲で優れた制振性を与えることができる。

請求の範囲

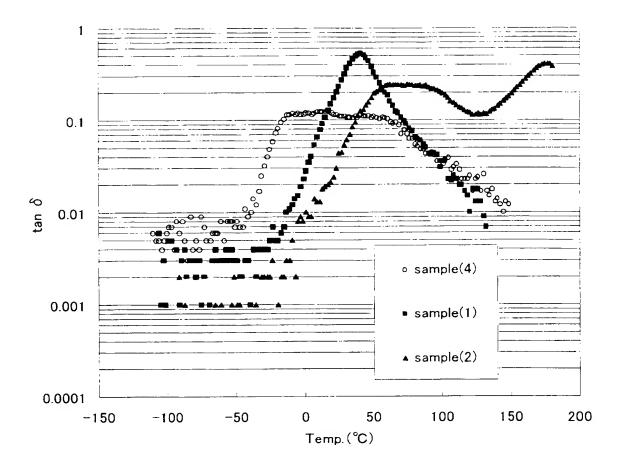
(1) 下記式(1)

 $(A - F)_{n} - A \tag{1}$

(但し、式中Aは(a) 2 又は3 環の芳香族化合物30~90重量%及び(b) フェノール類10~70重量%からなる成分であり、Fはメチレン又はメチレンと・CH₂O CH₂-である。nは1~100の数である。)で表わされる芳香族オリゴマー。

- (2) 含酸素率が20%以下である請求項1に記載の芳香族オリゴマー
- (3) 請求項1記載の芳香族オリコマーを主成分とする芳香族オリゴマー樹脂。
- (4) ナフタレン、メチルナフタレン、ジメチルナフタレン、アセナアテン、フルオレン、アントラセン、フェナンスレン、ビンン、ベンゾチオフェン及びフルオランテンから選ばれる1種又は2種以上の芳香族化合物とフェノール及びアルキルフェノールから選ばれる1種又は2種以上のフェノール類と、ホルマリン、ホルムアルデヒド及びパラホルムアルデヒドから選ばれる1種又は2種以上のホルムアルデヒド類を、反応させて得られる芳香族オリゴマーであって、軟化点が50~180℃である請求項1に記載の芳香族オリゴマー。
- (5) 請求項1に記載の芳香族オリゴマーを有効成分とすることを特徴とする粘着性付与剤。
- (6) 請求項1に記載の芳香族オリゴマーを有効成分とすることを特徴とする制振性付与剤。

Fig. 1



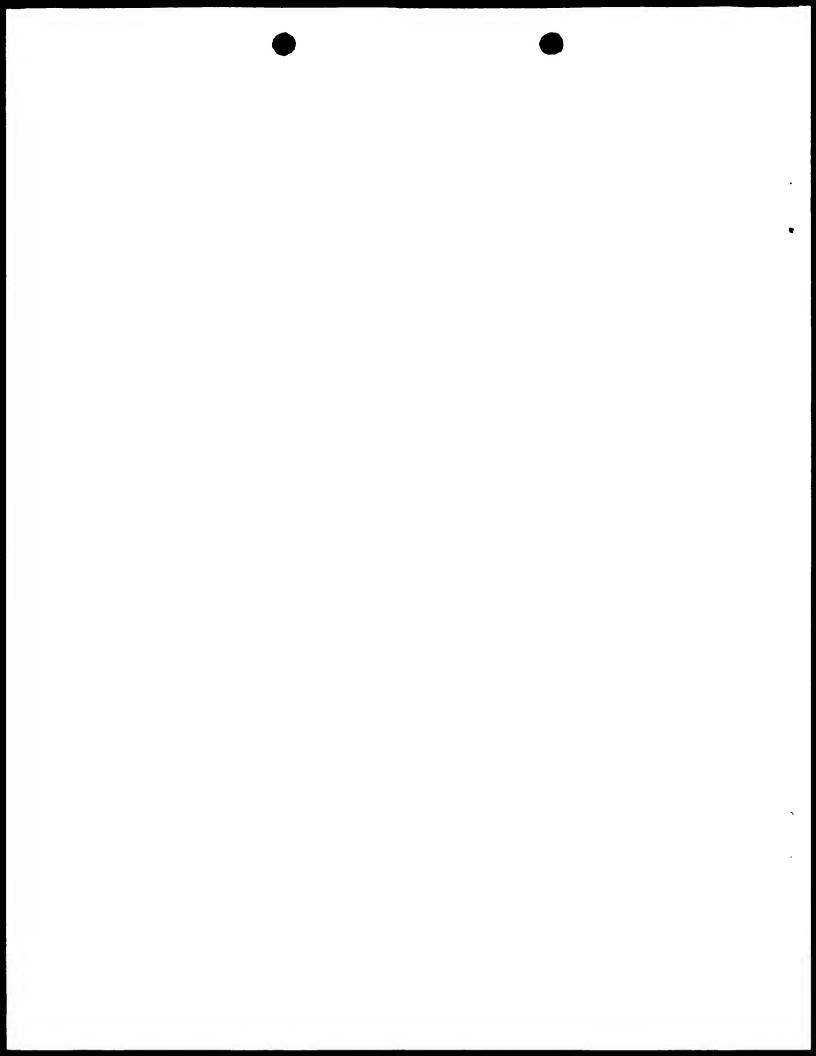
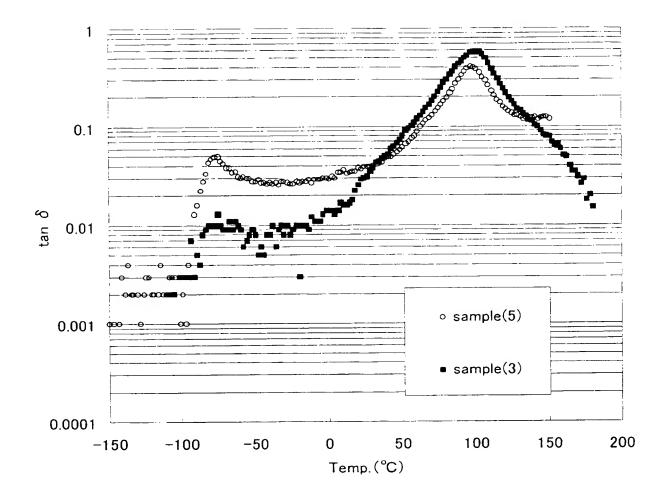
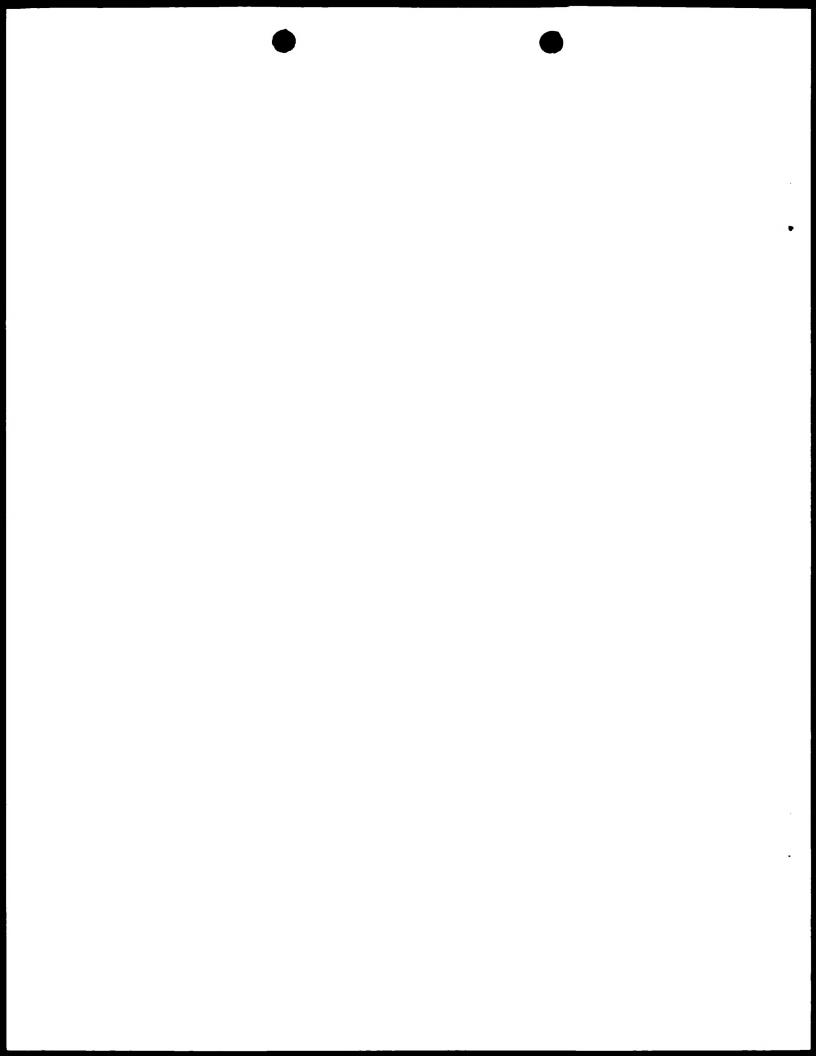


Fig. 2





INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05881

	A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER Int.Cl ⁷ C08G 14/04 C09D161/34 C08L 61/34 C09J161/34					
	o International Patent Classification (IPC) or to both na S SEARCHED	tional classification and IPC				
	scumentation searched (classification system followed	by classification symbols)				
Int.	·	.61/00-34				
	·	.61/00-34				
Jits	ion searched other than minimum documentation to the uyo Shinan Koho 1926-1996 i Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku K	oho 1996-2000			
	ata base consulted during the international search (nam ONLINE L	e of data base and, where practicable, sea	rch terms used)			
C. DOCUI	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT					
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.			
Х	JP, 11-199656, A (NIPPON KAYAKU	J CO., LTD.),	1,3			
A	27 July, 1999 (27.07.99), Claim 1 (Family: none)		2,4-6			
Х	JP, 4-277575, A (Nippon Steel (Chemical Co., Ltd.),	1,3-4			
A	02 October, 1992 (02.10.92), Claims 1 to 2 (Family: none)		2,5-6			
Х	JP, 4-277576, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4			
A	02 October, 1992 (02.10.92), Claim 1; page 2, left column, 1	inos 43 to 50	2,5-6			
	(Family: none)	Times 42 to 50				
х	JP, 4-277578, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4			
A	02 October, 1992 (02.10.92), Claim 1; page 2, left column, 1	ines 43 to 50	2,5-6			
	(Family: none)					
х	JP, 4-96915, A (Nippon Steel Ch	nemical Co., Ltd.),	1,3-4			
A	30 March, 1992 (30.03.92),	lines 17 to 20	2,5-6			
	Claims; page 2, upper left colu (Family: none)	inui, lines 17 CO 20				
Further	documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.				
* Special "A" docume						
conside	considered to be of particular relevance understand the principle or theory underlying the invention					
date considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone						
cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other combined with one or more other such documents, such						
means combination being obvious to a person skilled in the art "P" document published prior to the international filing date but later "&" document member of the same patent family						
than the priority date claimed						
	ctual completion of the international search ovember, 2000 (28.11.00)	05 December, 2000 (C				
	ailing address of the ISA/	Authorized officer				
Uapa Taribita	Japanese Patent Office Telephone No.					

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05881

ategory*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No
X A	JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chem. Co., Ltd.), 15 October, 1983 (15.10.83), Claims (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 22 March, 1994 (22.03.94), Claim 1; page 4, right column, the 22 nd line from the bottom to the 5 th line from the bottom (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	GB, 1259910, A (NAUCHINO-ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organized and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics), 12 January, 1972 (12.01.72), Claims; EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2014175, A & FR, 2086766, A	1,3-4 2,5-6
X A	JP, 2-274714, A (KASHIMA OIL COMPANY, LIMITED), 08 November, 1990 (08.11.90), Claims; page 3, lower right column, lines 3 to 18 (Family: none)	1,3 2,4-6
X A	US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July, 1983 (26.07.83), Claims (Family: none)	1,3 2,4-6

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

A. 発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))				
Int.	C17 C 0 8 G 1 4 0 4 C 0 8 L 6 1 3 4	C 0 9 D 1 6 1 / 3 4 C 0 9 J 1 6 1 / 3 4		
	ゴった分野			
調査を行った最	最小限資料(国際特許分類(IPC))			
Int.	C1 ⁷ $C \ 0 \ 8 \ G \ 1 \ 4 \ (0 \ 0 - 1 \ 4 \ C \ 0 \ 8 \ L \ 6 \ 1 \ (0 \ 0 - 3 \ 4 \)$	C 0 9 D 1 6 1 / 0 0 - 3 4 C 0 9 J 1 6 1 / 0 0 - 3 4		
日本 日本 日本	中の資料で調査を行った分野に含まれるもの国実用新案公報1926-1996年国公開実用新案公報1971-2000年国実用新案登録公報1996-2000年国登録実用新案公報1994-2000年			
国際調査で使用	用した電子データベース(データベースの名称、	調査に使用した用語)		
l .	AS ONLINE PI/L			
	ると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連すると	ときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号	
X A	JP,11-199656,A(日本化27.7月.1999(27.07.99	:薬株式会社)	1, 3 2, 4-6	
X A	JP,4-277575,A(新日鐵化 2.10月.1992(02.10.92	学株式会社)),請求項1-2(ファミリーなし)	1,3-4 2,5-6	
X A	JP,4-277576,A(新日鐵化 2.10月.1992(02.10.92 請求項1,第2頁左欄第42~50行(ファ)	1,3-4 2,5-6	
x C欄の続き	きにも文献が列挙されている。	□ パテントファミリーに関する別	紙を参照。	
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献(理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 28.11 00		国際調査報告の発送日 05	.12.00	
日本[の名称及びあて先 国特許庁(ISA/JP) 略便番 号100-8915	特許庁審査官(権限のある職員) 前田 孝泰 - 印	1)	
i	部千代田区霞が関三丁日4番3号	電話番号 03-3581-1101	内線 3457	

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

C (続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*		関連する 請求の範囲の番号
X A	JP,4-277578,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92) 請求項1,第2頁左欄第43~50行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,4-96915,A(新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992(30.03.92) 特許請求の範囲,第2頁左上欄第17~20行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,58-176210,A(新日本製鉄化学工業株式会社) 15.10月.1983(15.10.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	JP,6-80766,A(松下電器産業株式会社) 22.3月.1994(22.03.94) 請求項1,第4頁右欄下から第22行~下から第5行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
XA	GB, 1 2 5 9 9 1 0, A (NAUCHINO—ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organised and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics) 1 2. 1 月. 1 9 7 2 (1 2. 0 1. 7 2) 特許請求の範囲, EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2 0 1 4 1 7 5, A & F R, 2 0 8 6 7 6 6, A	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,2-274714,A(鹿島石油株式会社) 8.11月.1990(08.11.90) 特許請求の範囲,第3頁右下欄第3~18行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company) 26.7月.1983(26.07.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6

| 今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)



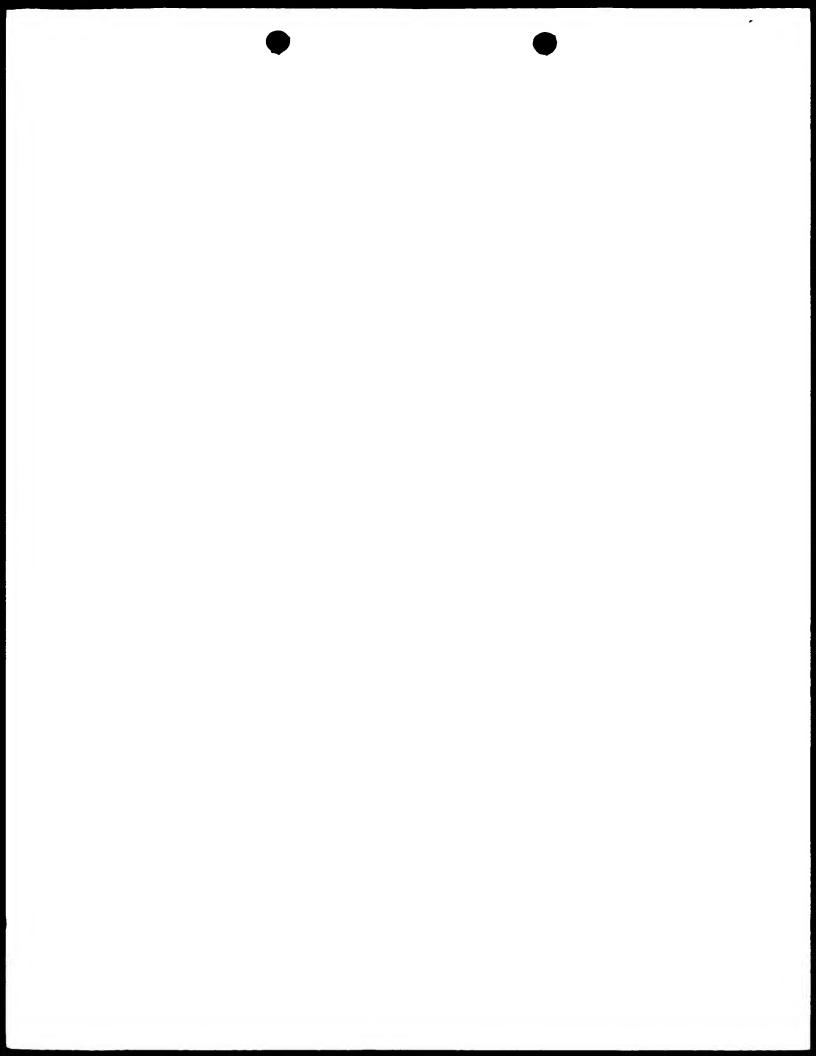
出願人又は代理人

 $P \subset T$

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条) [PCT18条、PCT規則43、44]

の書類記号 NTK00-1287	及び下記5を参照すること。				
国際出願番号 PCT/JP00/05881	国際出願日(日.月.年)	30.08.00	優先日 (日.月.年)	31.08.99	
出願人 (氏名又は名称)	新日氨	戴化学株式会社			
			·····		
国際調査機関が作成したこの国際調査 この写しは国際事務局にも送付される		見則第41条(PCT1	8条) の規定に従い	出願人に送付する。	
この国際調査報告は、全部で3	ページである	Š.			
この調査報告に引用された先行打	支術文献の写しも 	ら添付されている。 			
1. 国際調査報告の基礎 a. 言語は、下記に示す場合を除ぐ この国際調査機関に提出さ				った。	
b. この国際出願は、ヌクレオチト この国際出願に含まれる書			の配列表に基づき国際	際調査を行った。	
□この国際出願と共に提出さ	れたフレキシブ	ルディスクによる配列	表		
出願後に、この国際調査機	関に提出された	書面による配列表			
出願後に、この国際調査機	関に提出された	フレキシブルディスク	による配列表		
出願後に提出した書面によ	る配列表が出願	時における国際出願の	開示の範囲を超える	事項を含まない旨の陳述	
書の提出があった。 書面による配列表に記載し 書の提出があった。	た配列とフレキ	シブルディスクによる	配列表に記録した配	2列が同一である旨の陳述	
	こっさい (谷)	48月 35、077 \			
2. 請求の範囲の一部の調査が	・できない (弗)	(順			
3. 登明の単一性が欠如してい	^る(第11欄参照	3) 。			
4. 発明の名称は 🗓 出願	重人が提出したも	のを承認する。			
□ 次に	に示すように国際	際調査機関が作成した。			
_					
5. 要約は x 出願	賃人が提出したも	のを承認する。			
國防	際調査機関が作成		の国際調査報告の発達	削38.2(b)) の規定により 送の日から1カ月以内にこ	
6. 要約書とともに公表される図は、					
第 図とする。 🗌 出解	入が示したとお	らいである。	しなし		
区 出版	1人は図を示さな	かった。			
一 本図]は発明の特徴を	一層よく表している。			



発明の属する分野の分類(国際特許分類(IPC))

Int. Cl⁷

Α.

C08G 14/04

CO8L 61/34

C09D161/34 C09J161/34

調査を行った分野

調査を行った最小限資料(国際特許分類(IPC))

Int. Cl7

C08G 14 00-14

C08L 61 00-34

C09D161/00-34 C09J161/00-34

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報

1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE WP I/L

C. 関連すると認められる文献

L 0. /~~	2 BU 62 94 0 8 1 C BU	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP,11-199656,A(日本化薬株式会社) 27.7月.1999(27.07.99),請求項1(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	JP,4-277575,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92),請求項1-2(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,4-277576,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92) 請求項1,第2頁左欄第42~50行(ファミリーなし)	1,3-4 2,5-6

|x| C欄の続きにも文献が列挙されている。

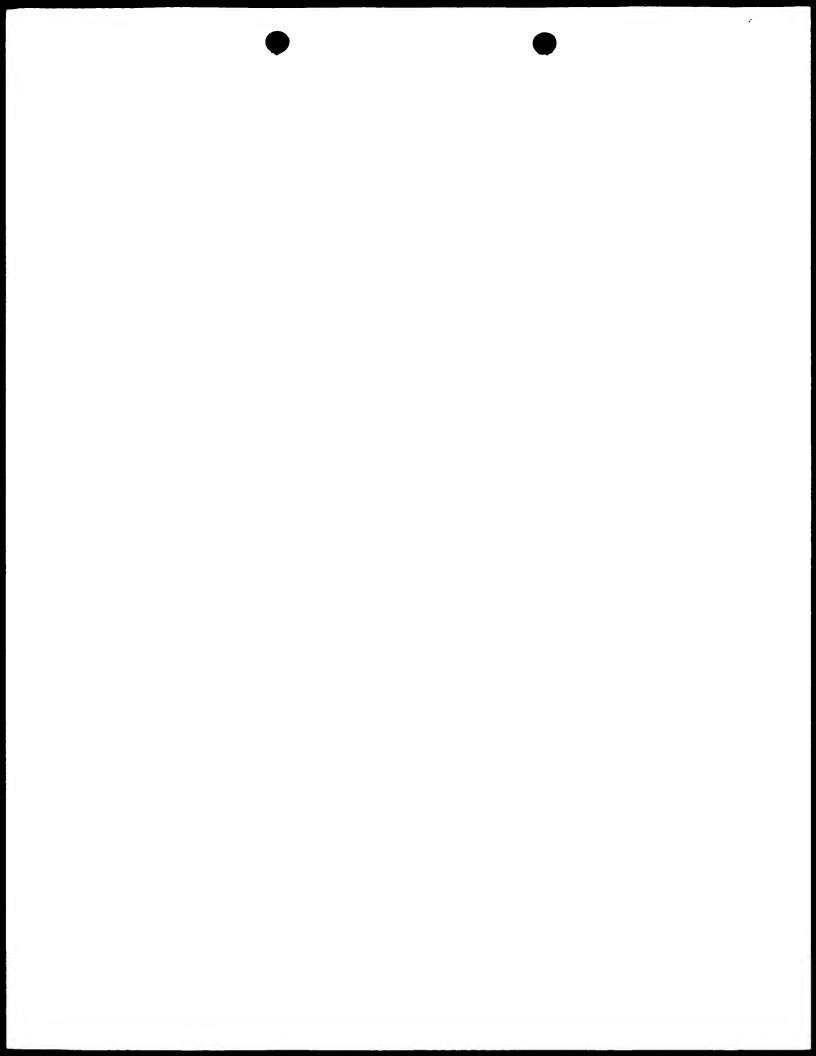
* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示す もの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日 以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行 日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する 文献(理由を付す)
- 「〇」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願目前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

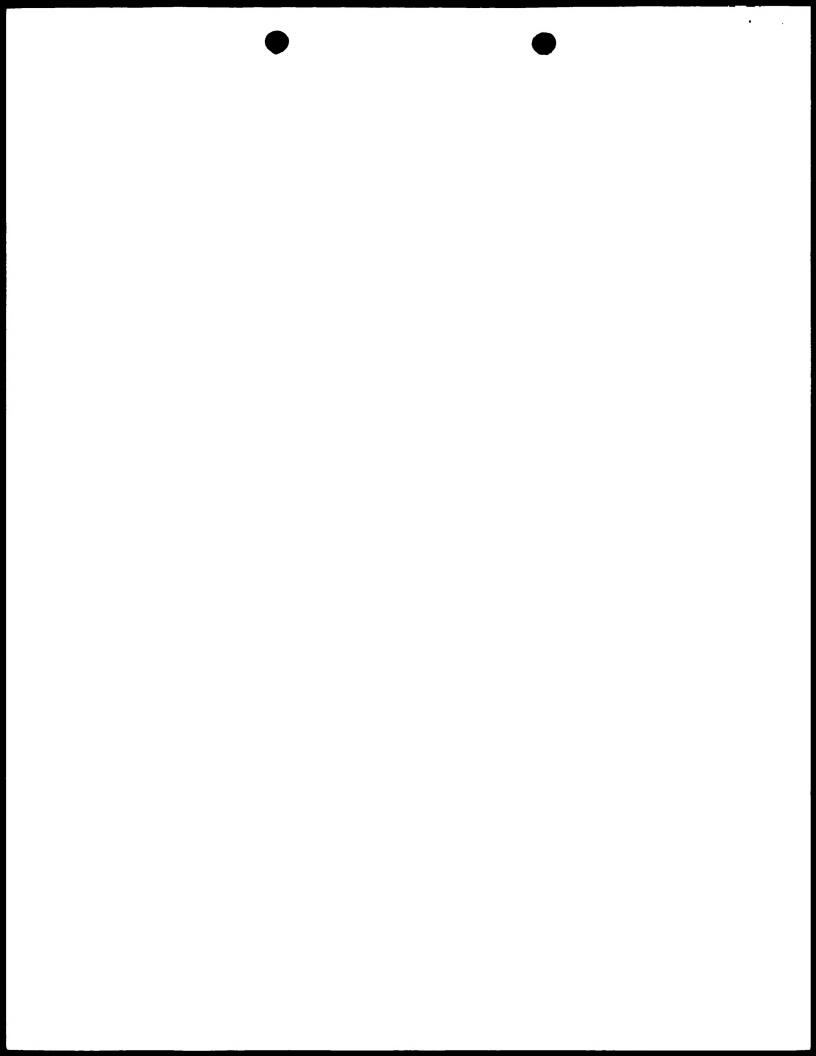
- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって 出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論 の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明 の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以 上の文献との、当業者にとって自明である組合せに よって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査報告の発送日 国際調査を完了した日 0 5.12.00 28.11.00 国際調査機関の名称及びあて先 9456 特許庁審査官(権限のある職員) 、戶即 日本国特許庁 (ISA/JP) 前田 孝泰 郵便番号100--8915 電話番号 03-3581-1101 内線 3457 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号



国際調査報告

C(続き).	関連すると認められる文献	
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP,4-277578,A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992(02.10.92) 請求項1,第2頁左欄第43~50行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,4-96915,A(新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992(30.03.92) 特許請求の範囲,第2頁左上欄第17~20行(ファミリーなし)	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,58-176210,A(新日本製鉄化学工業株式会社) 15.10月.1983(15.10.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	JP,6-80766,A(松下電器産業株式会社) 22.3月.1994(22.03.94) 請求項1,第4頁右欄下から第22行~下から第5行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	GB, 1 2 5 9 9 1 0, A (NAUCHINO—ISSLEDOVATELSKY INSTITUT PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, organised and existing under the Laws of the Union of Soviet Socialist Republics) 1 2. 1 月. 1 9 7 2 (1 2. 0 1. 7 2) 特許請求の範囲, EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2 0 1 4 1 7 5, A & FR, 2 0 8 6 7 6 6, A	1, 3-4 2, 5-6
X A	JP,2-274714,A(鹿島石油株式会社) 8.11月.1990(08.11.90) 特許請求の範囲,第3頁右下欄第3~18行(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6
X A	US,4395498,A(Minnesota Mining and Manufacturing Company)26.7月.1983(26.07.83) 特許請求の範囲(ファミリーなし)	1, 3 2, 4-6





PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

NARUSE, Eatsuo Central Shinbashi Bldg., 5th Floor 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome

Minato-ku Tokyo 105-0003 JAPON



IMPORT	ANT	NOT	1CE

International application No. PCT/JP00/05881

NTK00-1287

Date of mailing (day/month/year) 08 March 2001 (08.03.01)

Applicant's or agent's file reference

International filing date (day/month/year) 30 August 2000 (30.08.00)

Priority date (day/month/year) 31 August 1999 (31.08.99)

Applicant

NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD. et al

 Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice: AU,KP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AE,AG,AL,AM,AP,AT,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CA,CH,CN,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EA,EE,EP,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KZ,LC,LK,LR;LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,OA,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,The communication will be made to those Offices only upon their request: Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 08 March 2001 (08.03.01) under No. WO 01/16199

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

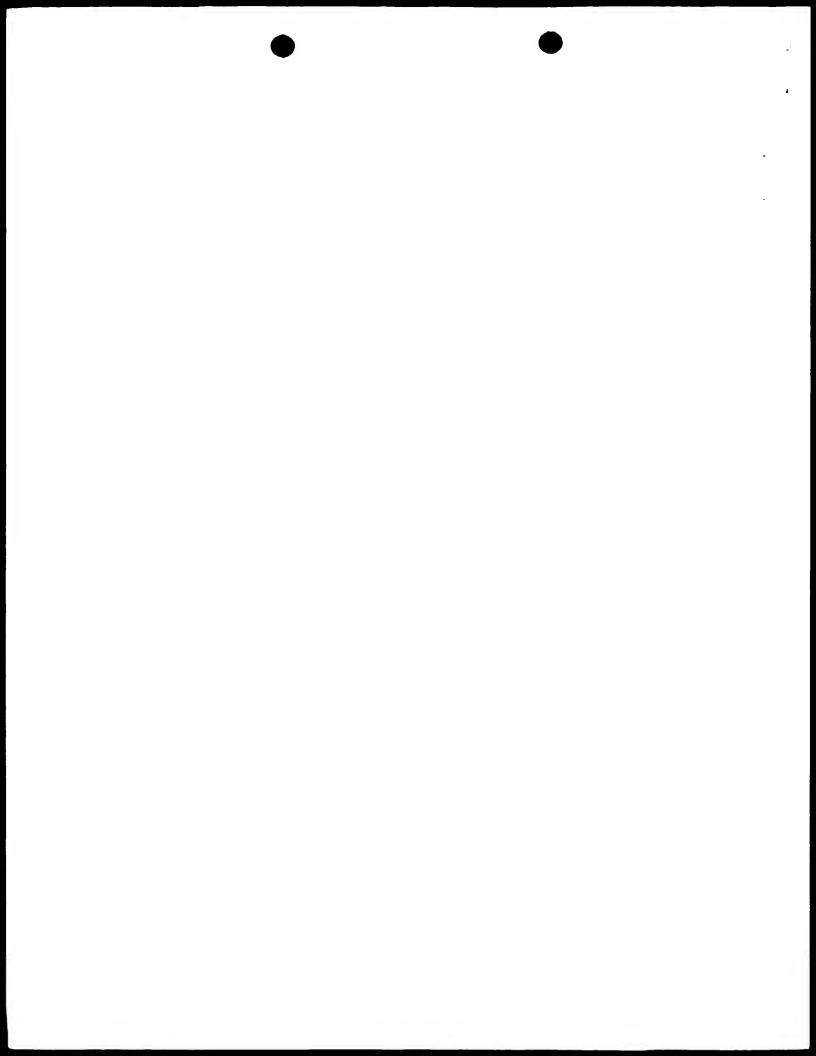
The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

J. Zahra

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Telephone No. (41-22) 338.83.38



PCT

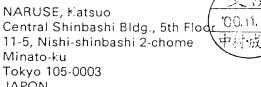
NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

NARUSE, Katsuo Central Shinbashi Bldg., 5th Flod 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome Minato-ku

JAPON



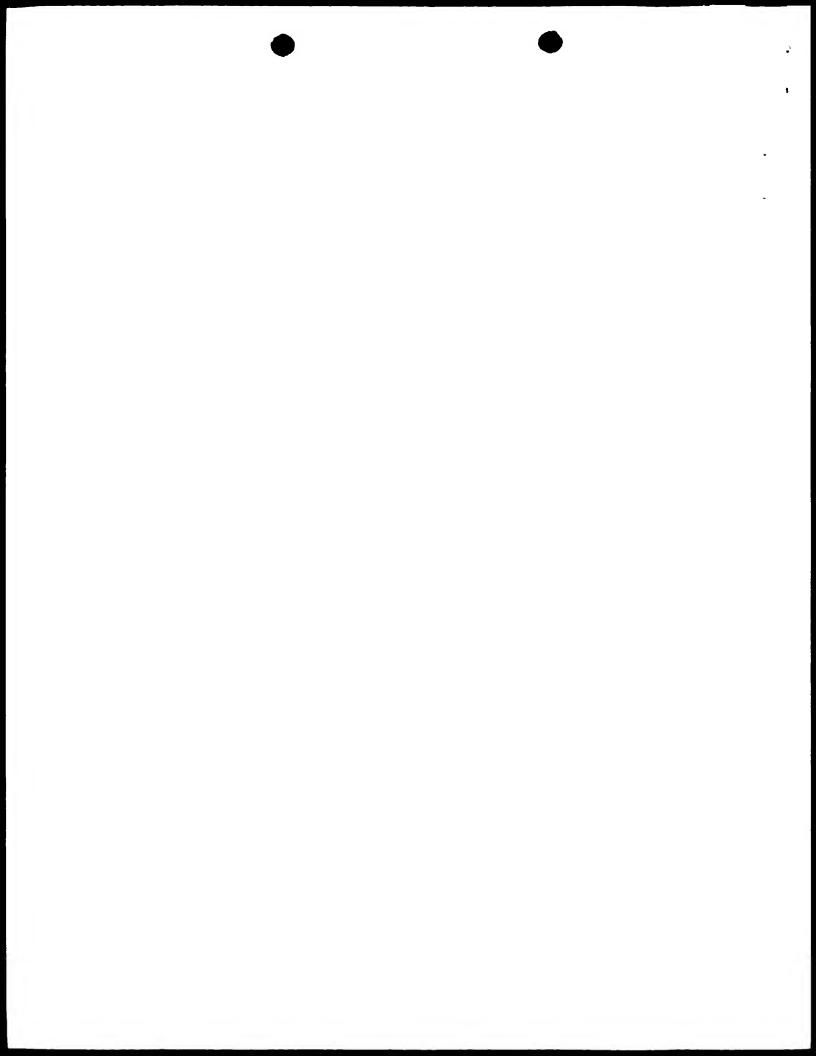
Date of mailing (day/month/year) 02 November 2000 (02.11.00)	
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/05881	International filing date (day/month/year) 30 August 2000 (30.08.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 31 August 1999 (31.08.99)

NIPPON STEEL CHEMICAL CO., LTD. et al

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	<u>Date of receipt</u> of priority document
31 Augu 1999 (31.08.99)	11/244432	JP	20 Octo 2000 (20.10.00)
03 July 2000 (03.07.00)	2000/200630	JP	20 Octo 2000 (20.10.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer Carlos Naranjo	M
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38	



37

PCT

国際予備審査報告

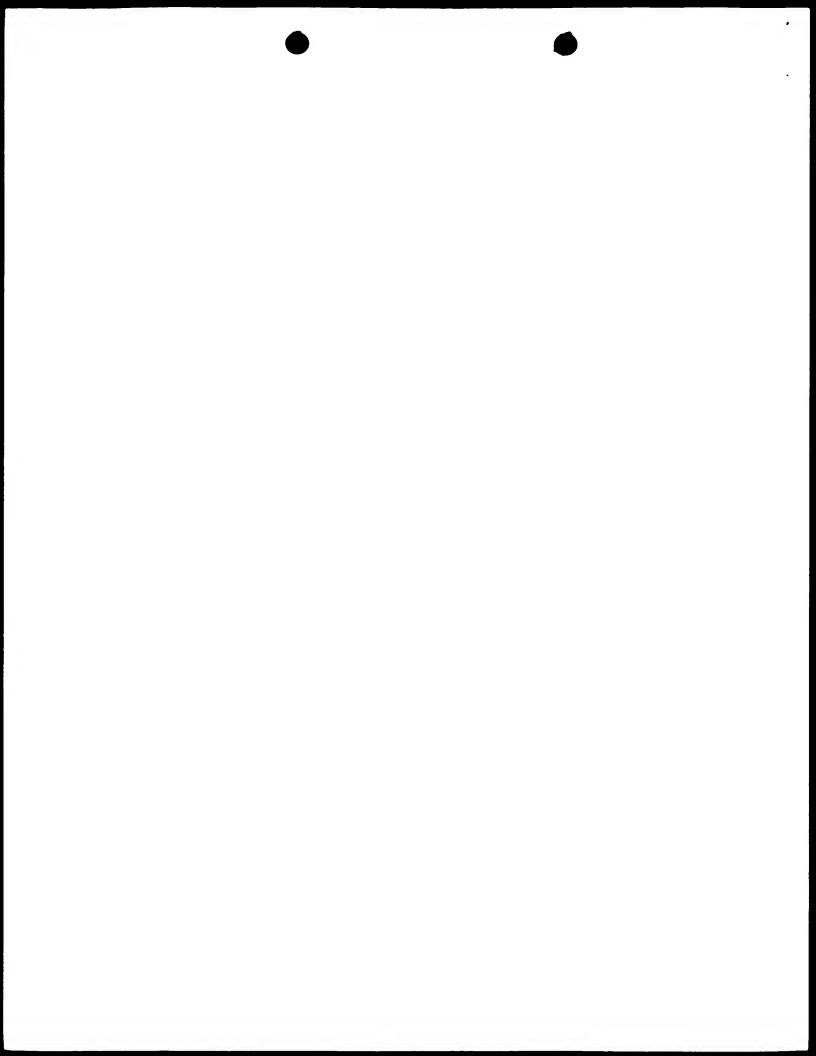
(法第12条、法施行規則第56条) [PCT36条及びPCT規則70]

	REC'D	3 0	NOV	2001	
!	WIPO		F	CT	\dashv

3 4 5 7

電話番号 03-3581-1101 内線

出願人又は代理人 の書類記号 NTK00-1287	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。
国際出願番号 PCT/JP00/05881	国際出願日 (日.月.年) 30.08.00 優 先日 (日.月.年) 31.08.99
国际付計力規(エエモ)	8G 14/04, C09D161/34, 8L 61/34, C09J161/34,
出願人 (氏名又は名称)	新日鐵化学株式会社
2. この国際予備審査報告は、この表紙 □ この国際予備審査報告には、同 査機関に対してした訂正を含む (PCT規則70.16及びPCT この附属書類は、全部で □ 3. この国際予備審査報告は、次の内部 Ⅰ 図 国際予備審査報告の基礎 Ⅱ □ 優先権 Ⅲ □ 新規性、進歩性又は産業 Ⅳ □ 発明の単一性の欠如	ページである。 容を含む。
国際予備審査の請求書を受理した日 19.02.01	国際予備審査報告を作成した日 12.11.01
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4	前田 孝泰



国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

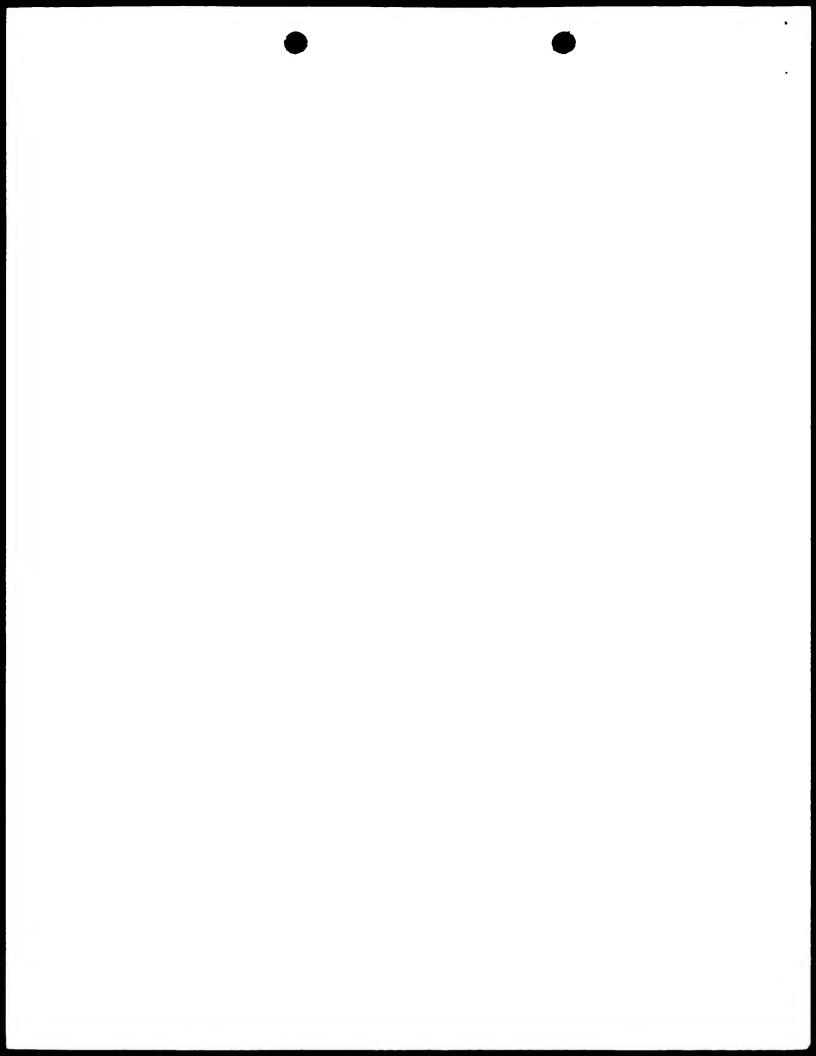
Ι.	[国際予備審査報	最告の基礎		
1.	Ę	この国際予備額 応答するために PCT規則70.	に提出された差し替え用紙	に基づいて作成さ; は、この報告書に	れた。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に おいて「出願時」とし、本報告書には添付しない。
	x	出願時の国際	党出願書類		
		明細書明細書	第 	ページ、 ページ、 ページ、	出願時に提出されたもの 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの 付の書簡と共に提出されたもの
		明細書	第	項、	出願時に提出されたもの
	Ш	請求の範囲 請求の範囲	第 第		PCT19条の規定に基づき補正されたもの
		請求の範囲			国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
		請求の範囲	第	項、	付の書簡と共に提出されたもの
		図面	第		出願時に提出されたもの
		図面	第	ーーページ/図、 ページ/図、	
	П	明細書の配列	 刊表の部分 第	ページ、	出願時に提出されたもの
			刊表の部分 第	ページ、	国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
		明細書の配列	引表の部分 第	ベージ、	付の書簡と共に提出されたもの
2.			頂の言語は、下記に示す場 下記の言語である	合を除くほか、こ	
	_				
	į		のために提出されたPCT		う翻訳文の言語
	[則48.3(b)にいう国際公開		
	{	国際予備	審査のために提出された F	P C T 規則55.2また	には55.3にいう翻訳文の言語
3.	3	この国際出願に	は、ヌクレオチド又はアミ	ノ酸配列を含んで	おり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。
	ſ	一一この国際	出願に含まれる書面による	5配列表	
	ĺ		出願と共に提出されたフリ		7 による配列表
	1				是出された書面による配列表
	ı I				是出されたフレキシブルディスクによる配列表
	ſ				る国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述
	į		があった	X N- HI BANG (C 431) 's	JEWILLING STRUCTURE CARROLL STRUCTURE STRUCTUR
	{	書面によ	る配列表に記載した配列!があった。	ヒフレキシブルディ	ィスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述
4.	¹	RFI &m str	下記の書類が削除された。 第	ページ	
	\exists	請求の範囲	第	— <u>—</u> 項	
		図面	第	~-	ジ/図
5.		この国際予修れるので、そ	- 着審査報告は、補充欄に示	:したように、補正 :のとして作成した	が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認めら。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上告に添付する。)



国際予備審査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05881

ころいての伝第12年(下で	. 135条(2)) に足める兄所、て4 	へを要付ける
請求の範囲 請求の範囲	2, 5-6 $1, 3-4$	有 無
請求の範囲 請求の範囲	2, 5 - 6 1, 3 - 4	有 無
		有 無
1) A(新日鐵化学株式 1 - 2) A(新日鐵化学株式 1,第2頁左欄第42 A(第1日鐵化學第4 1,第2頁左欄等 1,第2頁左欄等 (新日鐵化學第4 (新日鐵化第 (新日鐵化第 (新日鐵代第 (新日 (新日 (新日 (新日 (新日 (新日 (新日 (新日	会社) 2.10月.1992 会社) 2.10月.1992 ~50行) 会社) 2.10月.1992 ~50行) 吐) 30.3月.1992 機第17~20行) 学工業株式会社) 15.10 会社) 22.3月.1994 分XTELSKY INSTITUT organised and existing cialist Republics) 12. (AMPLE 1, EXAMPLE 3, TABL 社) 8.11月.1990 機第3~18行 and Manufacturing Comp 求の範囲)	O月. (1月. (E 1) (pany)
	請求の範囲 囲囲 囲囲 囲囲 田囲	5, A(日本化薬株式会社) 27.7月.1999 1) A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992 1-2) A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992 1,第2頁左欄第42~50行) A(新日鐵化学株式会社) 2.10月.1992 1,第2頁左欄第43~50行) (新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992 (新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992 (新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992 (新日鐵化学株式会社) 30.3月.1992 (於の範囲,第2頁左上欄第17~20行) 0, A(新日本製鉄化学工業株式会社) 15.1(公下電器産業株式会社) 22.3月.1994 (松下電器産業株式会社) 22.3月.1994 (NAUCHINO-ISSLEDOVATELSKY INSTITUT State Enterprise, organised and existing (NAUCHINO-ISSLEDOVATELSKY INSTITUT State Enterprise, organised and existing Inion of Soviet Socialist Republics) 12. (外部時請求の範囲, EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLA (鹿島石油株式会社) 8.11月.1990 校の範囲,第3頁右下欄第3~18行。(Minnesota Mining and Manufacturing Comp. 97.83)特許請求の範囲) を有しない。 場げる文献のうち、文献 2, 文献 3, 文献 4, 文



(54) COATING COMPOSITION AND COATED ALUMINUM MATERIAL

(11) 4-277577 (A) (43) 2.10.1992 (19) JP

(21) Appl. No. 3-38571 (22) 5.3.1991

(71) DAINIPPON TORYO CO LTD (72) HIRONARI TANABE(4)

(51) Int. Cl⁵. C09D163.02

PURPOSE: To provide a coating compsn, which gives a coating film excellent in corrosion resistance, electrodeposition coating properties, etc., and an aluminum material coated with the compsn, and excellent in formability.

CONSTITUTION: A coating compsn, which contains a bisphenol epoxy resin consisting of bisphenol A units, bisphenol F units, and epichlorohydrin units and a lubricant powder having a mean particle diameter of $0.1\text{-}20\mu\text{m}$, and an aluminum material coated with the compsn.

(54) ANTICORROSIVE COATING MATERIAL

(11) 4-277578 (A) (43) 2.10.1992 (19) JP

(21) Appl. No. 3-63886 (22) 5.3.1991

(71) NIPPON STEEL CHEM CO LTD (72) MORIO KIMURA(1)

(51) Int. Cl⁵. C09D175.04,C09D5 08

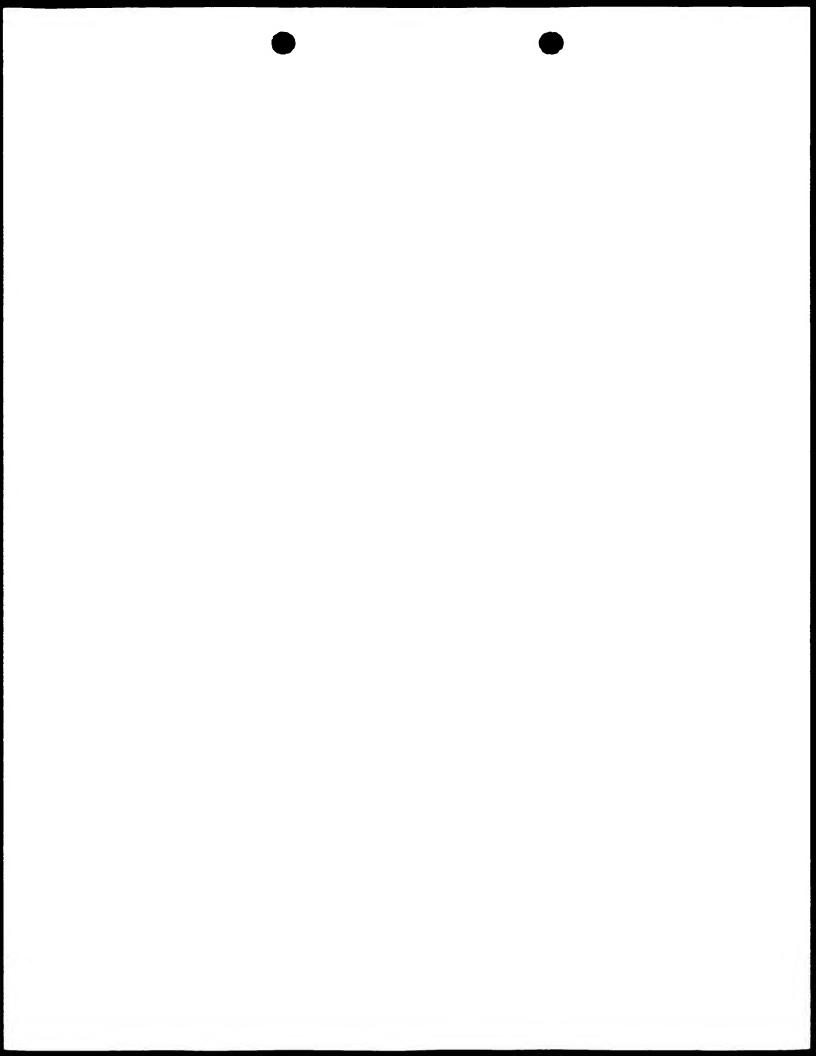
- PURPOSE: To obtain an anticorrosive coating material excellent in anticorrosiveness by incorporating a high-molecular polyol, a polyisocyanate compound, and an inorganic filler into a thermoplastic polycyclic aromatic resin made by reacting a polycyclic aromatic compound with a phenol and a specified cross-linking agent.
- CONSTITUTION: 100mol of a polycyclic aromatic compound (e.g. acenaphthene or diphenyl ether) is reacted with 10-50mol of a phenol (e.g. phenol or a 3-5C alkylphenol) and 50-200mol of a cross-linking agent selected between formaldehyde and dihydroxybenzene (e.g. paraformaldehyde) to prepare a thermoplastic polycyclic aromatic resin having an average molecular weight of 300 to 1,000. This resin, a high-molecular polyol, a polyisocyanate compound, and an inorganic filler are used as principal constituents to give an anticorrosive coating material. Because of excellent anticorrosiveness, it is suitable for use as a heavy-duty anticorrosive coating material.

(54) THERMOSETTING ADHESIVE AND ADHESIVE SHEET MADE THEREFROM

- (11) 4-277579 (A) (43) 2.10.1992 (19) JP
- (21) Appl. No. 3-63911 (22) 4.3.1991
- (71) NITTO DENKO CORP (72) YUTAKA TOZAKI(3)
- (51) Int. Cl⁵. C09J4.00,C09J7 02

PURPOSE: To obtain a thermosetting adhesive and an adhesive sheet which are excellent in storage stability.

CONSTITUTION: A thermosetting adhesive which is composed of a compound having at least one radical-reactive unsaturated bond in the molecule and a curing agent or free radical initiator incompatible with the unsaturated compound; and an adhesive sheet which has a layer of the adhesive on one side or both sides of a base sheet. The curing agent or free radical initiator can be dispersed uniformly as a whole so that good bonding can be effected by heating for a short time.



PCT

NOTIFICATION OF TRANSMITTAL OF COPIES OF TRANSLATION OF THE INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Rule 72.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To



NARUSE, Katsuo Central Shinbashi Bldg., 5th Floor 11-5, Nishi-shinbashi 2-chome Minato-ku Tokyo 105-0003 JAPON

IMPORTANT NOTIFICATION
International filing date (day/month/year) 30 August 2000 (30.08.00)

1. Transmittal of the translation to the applicant.

The International Bureau transmits herewith a copy of the English translation made by the International Bureau of the international preliminary examination report established by the International Preliminary Examining Authority.

2. Transmittal of the copy of the translation to the elected Offices.

The International Bureau notifies the applicant that copies of that translation have been transmitted to the following elected Offices requiring such translation:

EP,CA,CN,KP,RO,US

The following elected Offices, having waived the requirement for such a transmittal at this time, will receive copies of that translation from the International Bureau only upon their request:

AP,EA,AE,AG,AL,AM,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,BZ,CH,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DZ,EE,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KR,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,MZ,NO,NZ,PL,PT,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZW,OA

3. Reminder regarding translation into (one of) the official language(s) of the elected Office(s).

The applicant is reminded that, where a translation of the international application must be furnished to an elected Office, that translation must contain a translation of any annexes to the international preliminary examination report.

It is the applicant's responsibility to prepare and furnish such translation directly to each elected Office concerned (Rule 74.1). See Volume II of the PCT Applicant's Guide for further details.

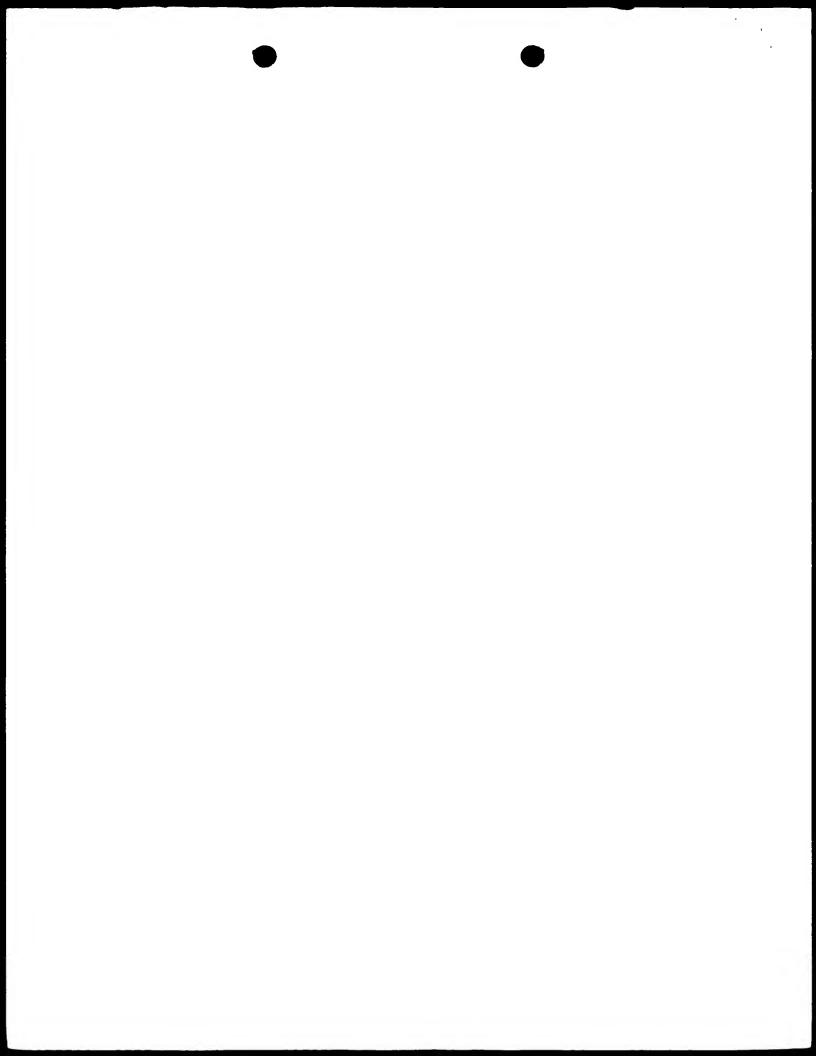
The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Eliott PERETTI

Telephone No. (41-22) 338.83.38



Translation

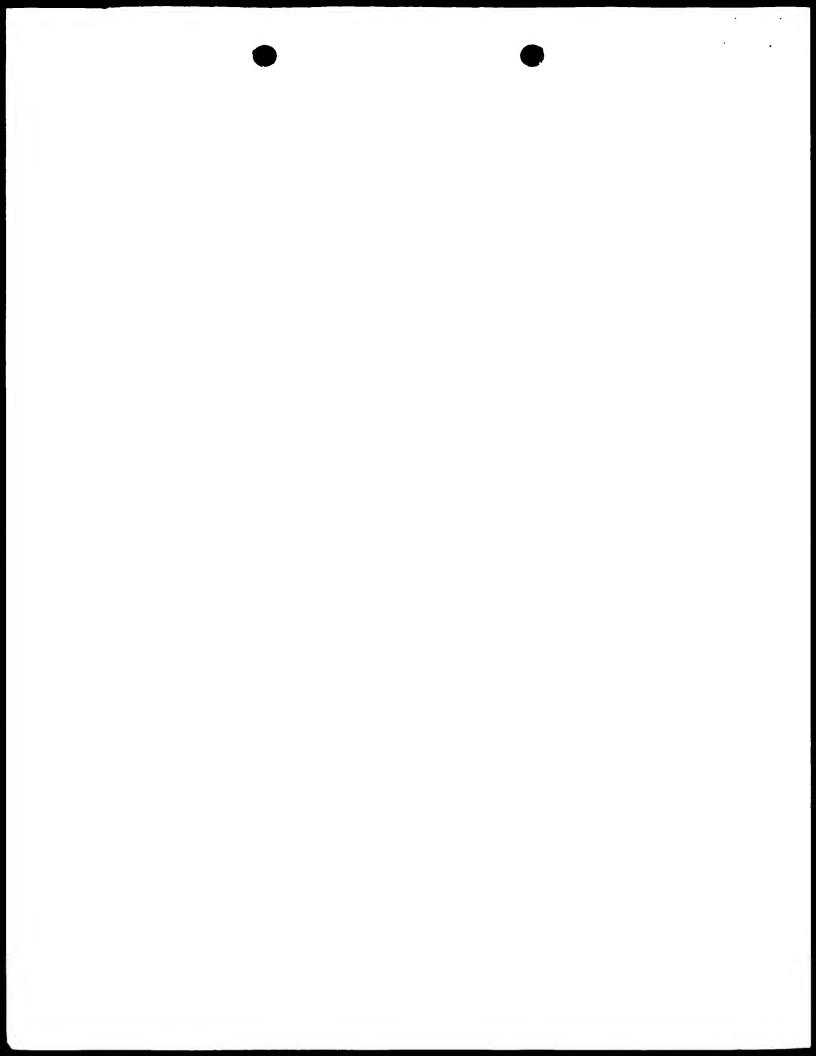
PATENT COOPERATION TREETY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

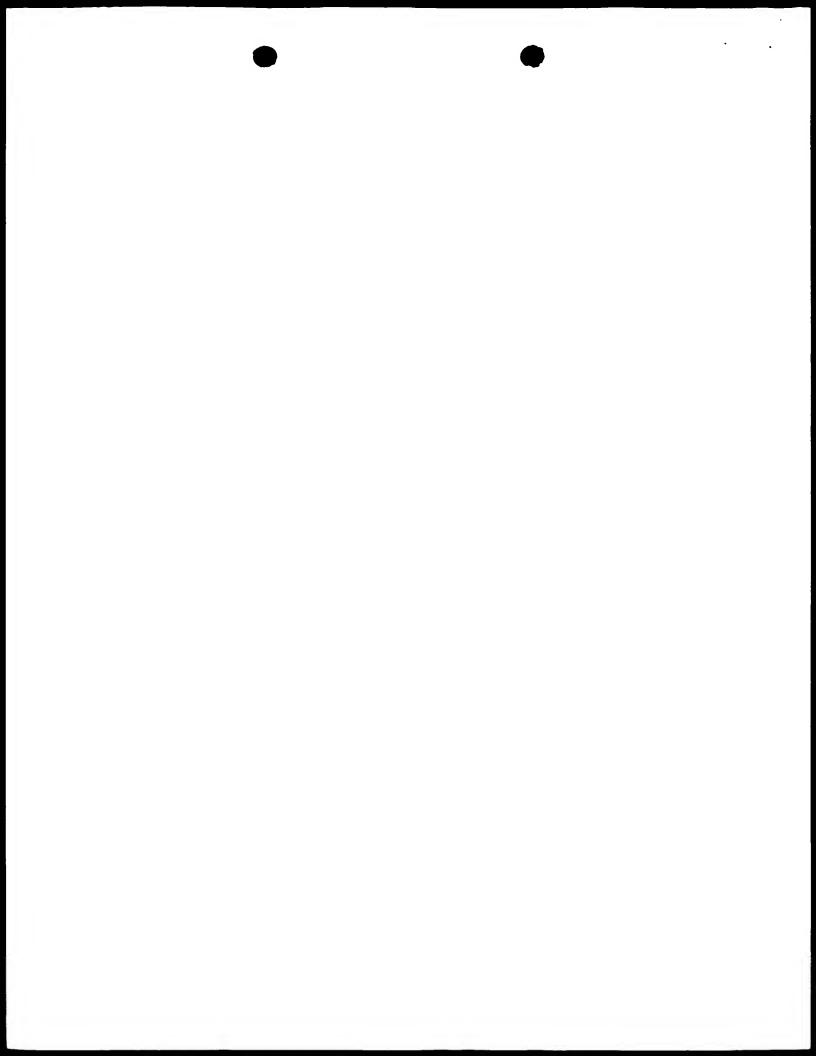
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287	FOR FURTHER A		tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/05881	International filing da 30 August 20		Priority date (day-month year) 31 August 1999 (31.08.99)
International Patent Classification (IPC) or n C08G 14'04, C08L 61/34, C09D			
Applicant NI	IPPON STEEL CH	EMICAL CO., LT	D.
1 This international preliminary examinand is transmitted to the applicant acceptance. 2. This REPORT consists of a total of	ecording to Article 36.		national Preliminary Examining Authority
been amended and are the base Rule 70.16 and Section 607 c	sis for this report and/o of the Administrative In	r sheets containing rec structions under the P	iption, claims and/or drawings which have ctifications made before this Authority (see CT).
These annexes consist of a to	tal of	sheets.	
3. This report contains indications relat	ting to the following ite	ems:	
Basis of the report			
II Priority			
III Non-establishment o	of opinion with regard t	o novelty, inventive st	ep and industrial applicability
IV Lack of unity of inve			
V Reasoned statement citations and explana	under Article 35(2) wir ations supporting such	th regard to novelty, in statement	iventive step or industrial applicability;
VI Certain documents o	cited		
VII Certain defects in th	e international applicat	ion	
VIII Certain observations	s on the international ap	oplication	
Date of submission of the demand		Date of completion of	of this report
19 February 2001 (19.0	02.01)		ovember 2001 (12.11.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP		Authorized officer	
Facsimile No		Telephone No	





rnational application No

I. I	I. Basis of the report				
1.	With	regard to	to the elements of the international application:*		
	\boxtimes	the inte	iternational application as originally filed		
	$\overline{\Box}$	the des	escription		
		pages)	, as originally filed	
		pages		filed with the demand	
		pages			
		the clai	aims:		
		pages	S	, as originally filed	
		pages	as amended (together with any state).	ement under Article 19	
		pages		, filed with the demand	
		pages			
		the dra	rawings:		
		pages	· · · · · · · · · · · · · · · · · · ·	, as originally filed	
		pages		. filed with the demand	
		pages			
		tha cagua	uence listing part of the description:		
		pages		, as originally filed	
		pages		, filed with the demand	
		pages			
2.	the i	nternation se elemen the lan	anguage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). anguage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). anguage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination	which is:	
3.	Witt prel	iminary e contair filed to furnish furnish The so interna	rd to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international applicative examination was carried out on the basis of the sequence listing: ained in the international application in written form. together with the international application in computer readable form. ished subsequently to this Authority in written form. statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond national application as filed has been furnished. statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written furnished.	the disclosure in the	
4.		The ar	amendments have resulted in the cancellation of: the description, pages the claims, Nos the drawings, sheets/fig		
5.		beyond	report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have not the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**		
	ın tı and	his repor 70-17)	nt sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Ai ort as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain an	iendments (Rule 70.10	
••	Any	replacem	ement sheet containing such amendments must be referred to under item! and annexed to this re	port	



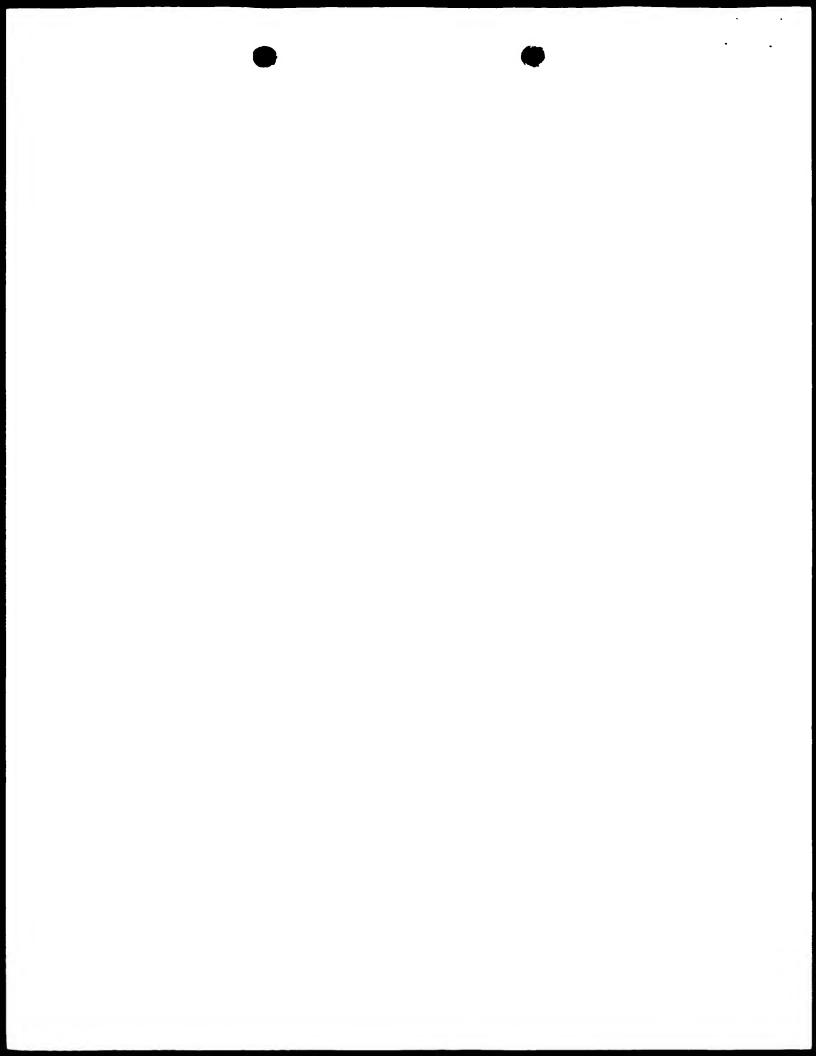
V.	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	citations and explanations supporting such statement

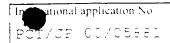
Statement			
Novelty (N)	Claims	2, 5-6	YES
,	Claims	1, 3-4	NO
Inventive step (IS)	Claims	2, 5-6	YES
·	Claims	1, 3-4	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

Claims 1 and 3 are not novel because they are disclosed in the following documents cited in the international search report.

- Document 1: JP, 11-199556, A (Nippon Kayaku Co., Ltd.), 27 July 1999 (27.07.99); Claim 1
- Decument 2: JP, 4-277575, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1992 (02.10.92); Claims 1 and 2
- Document 3: JP, 4-277576, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 42-50
- Execument 4: JP, 4-277578, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 43-50
- Document 5: JP, 4-96915, A (Nippor Steel Chemical Co., Ltd.), 30 March 1992 (30.03.92); claims and page 2, upper left column, lines 17-20
- Document 6: JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 15 October 1983 (15.10.83); claims
- Document 7: JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), I2 March 1994 (22.03.94); Claim 1, page 4, right column, line 22 from bottom to line 5 from bottom
- Document 8: GB, 1253910, A (Nauchino-Issledovatelsky



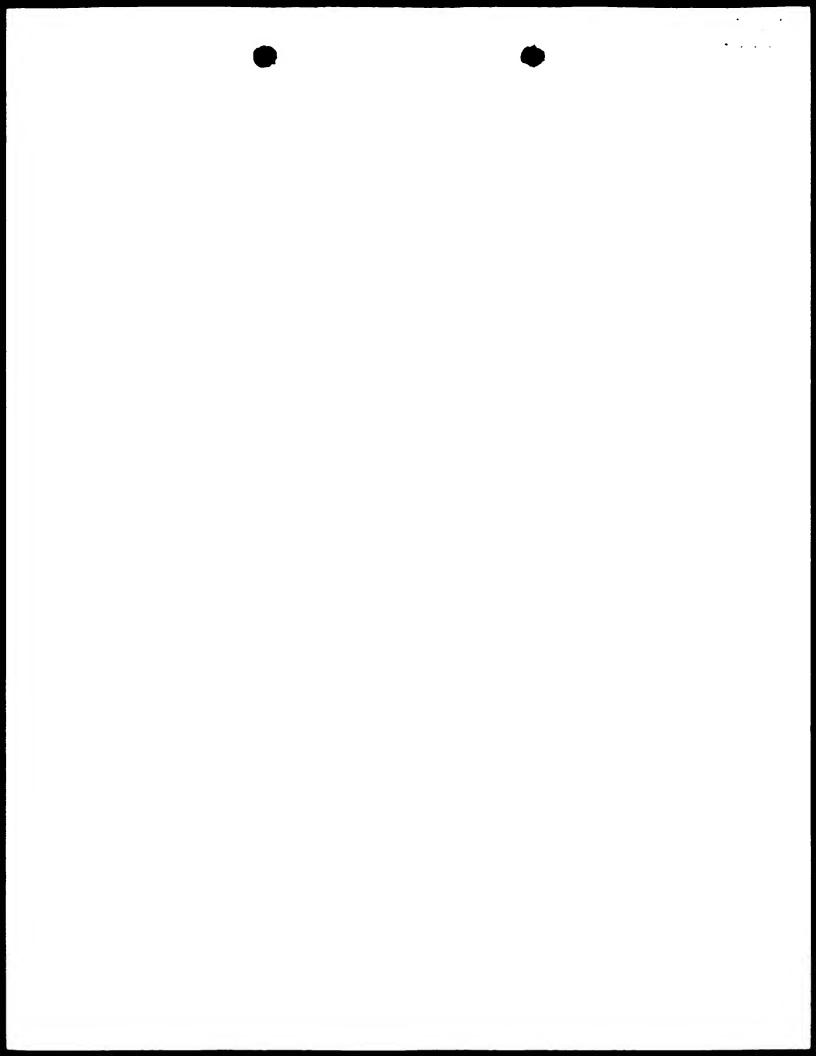


Institut Plasticheskikh Mass, a State
Enterprise, organized and existing under the
Laws of the Union of Soviet Socialist
Republics), 12 January 1972 (12.01.72);
claims, Example 1, Example 3 and Table 1)

Document 9: JP, 2-274714, A (Kashima Oil Company, Limited), 8 November 1990 (08.11.90); claims and page 3, lower right column, lines 3-18

Document 10: US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July 1983 (26.07.83); claims

Claim 4 is also not novel, since it is disclosed in Document 2, Document 3, Document 4, Document 5 and Document 8 above.



Translation IN

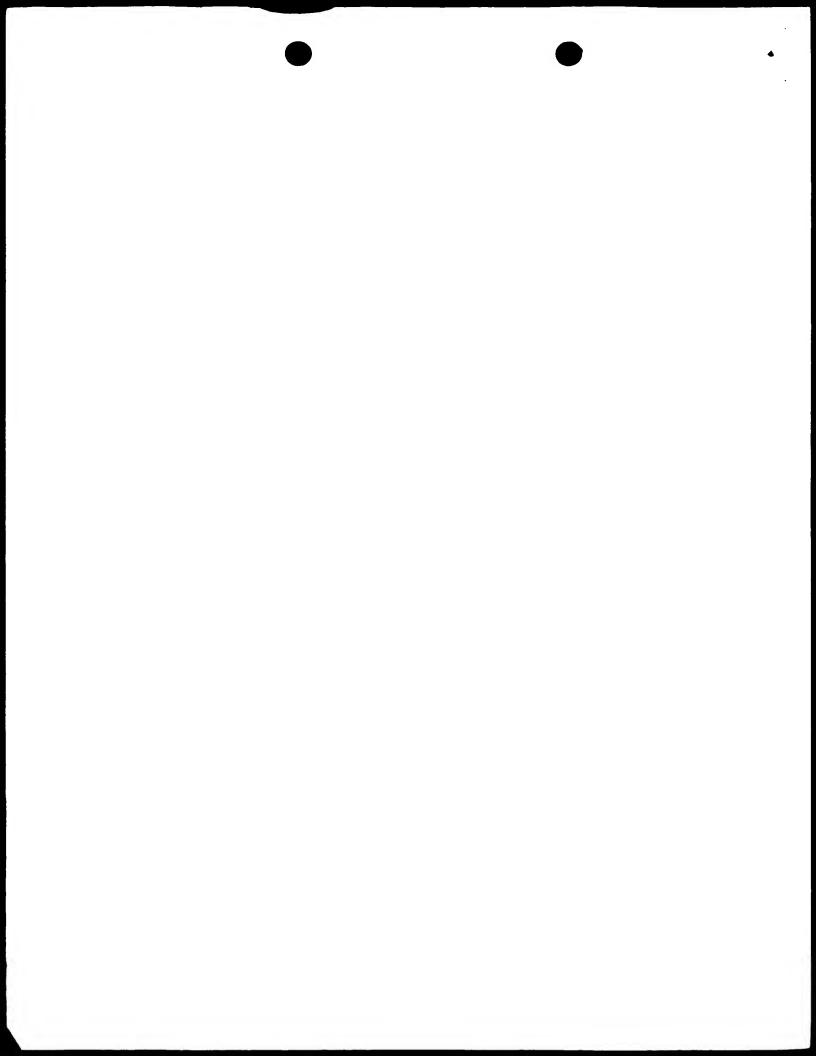
PATENT COOPERATION TEATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

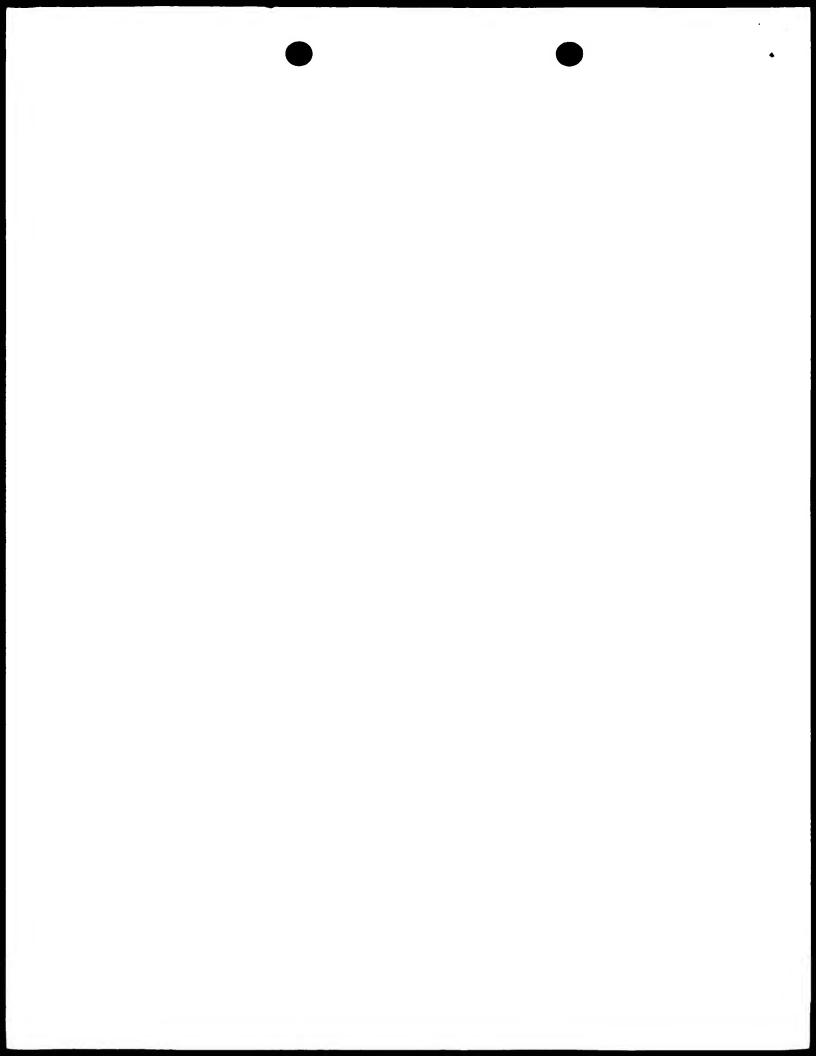
Applicant's or agent's file reference NTK00-1287	FOR FURTHER ACTION		tionofTransmittalofInternational Preliminary n Report (Form PCT/IPEA/416)
International application No. PCT/JP00/05881	International filing date (day 30 August 2000 (30		Priority date (day month year) 31 August 1999 (31.08.99)
International Patent Classification (IPC) or COSG 14 04, COSL 61/34, COSL			
Applicant	IPPON STEEL CHEMIC	AL CO., LT	D.
and is transmitted to the applicant a	according to Article 36.		national Preliminary Examining Authority
been amended and are the ba	unied by ANNEXES, i.e., sheet	s of the descr	ription, claims and/or drawings which have ctifications made before this Authority (see
These annexes consist of a to	otal of sheets.		Ma
Lack of unity of inv V Reasoned statemen citations and explar VI Certain documents VII Certain defects in the	of opinion with regard to novelowention t under Article 35(2) with regard to note that the statement of the	d to novelty, in	ep and industrial applicability
Date of submission of the demand		of completion of	
19 February 2001 (19. Name and mailing address of the IPEAJP		12 No	ovember 2001 (12.11.2001)
Facsimile No		none No.	





International application No.

1.	Basis	of the re	eport	
1.	With	regard to	o the elements of the international application:*	
	\boxtimes	the inte	ernational application as originally filed	
		the des	scription	
		pages		as originally filed
		pages		, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
		the clai	ims:	
	_	pages		. as originally filed
		pages	, as amended (together with any state	ement under Article 19
		pages		, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
		the drav	awings:	
	_	pages		. as originally filed
		pages		, filed with the demand
		pages	, filed with the letter of	
		the seque	ence listing part of the description:	
		•		, as originally filed
		pages		
		pages	, filed with the letter of	
2.	the i	internation se elemen the lan	to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority is onal application was filed, unless otherwise indicated under this item. Into were available or furnished to this Authority in the following language Into a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).	
			nguage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).	
	Ш	the lan or 55.3	nguage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination 3).	(under Rule 55.2 and/
3.	Wit prel	h regard iminary e	to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international applicate examination was carried out on the basis of the sequence listing:	ation, the international
		contair	ned in the international application in written form.	
	Щ	filed to	ogether with the international application in computer readable form.	
	Щ	furnish	hed subsequently to this Authority in written form.	
	Щ	1	hed subsequently to this Authority in computer readable form.	
			statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond ational application as filed has been furnished.	the disclosure in the
			tatement that the information recorded in computer readable form is identical to the writte furnished.	en sequence listing has
4.		The an	mendments have resulted in the cancellation of:	
			the description, pages	
			the claims. Nos.	
			the drawings, sheets/fig	
5.			eport has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have it the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**	e been considered to go
*	in th	lacement . his report	sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under A rt as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain an	rticle 14 are referred to mendments (Rule 70.16
**			nent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this re	port



PCT. JP | 08 | 088e1

$ _{\mathbf{v}_{\cdot}} $	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
	significant and explanations supporting such statement

Statement			
Novelty (N)	Claims	2, 5-6	YES
	Claims	1, 3-4	NO
Inventive step (IS)	Claims	2, 5-6	YES
·	Claims	1, 3-4	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-6	YES
muusinai appiicamity (174)	Claims		NO

Citations and explanations

Claims 1 and 3 are not novel because they are disclosed in the following documents cited in the international search report.

Document 1: JP, 11-199556, A (Nippon Kayaku Co., Ltd.), 27 July 1999 (27.07.99); Claim 1

Document 2: JP, 4-277875, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd., 2 October 1992 (02.10.92); Claims 1 and 2

Document 3: JP, 4-277576, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 42-50

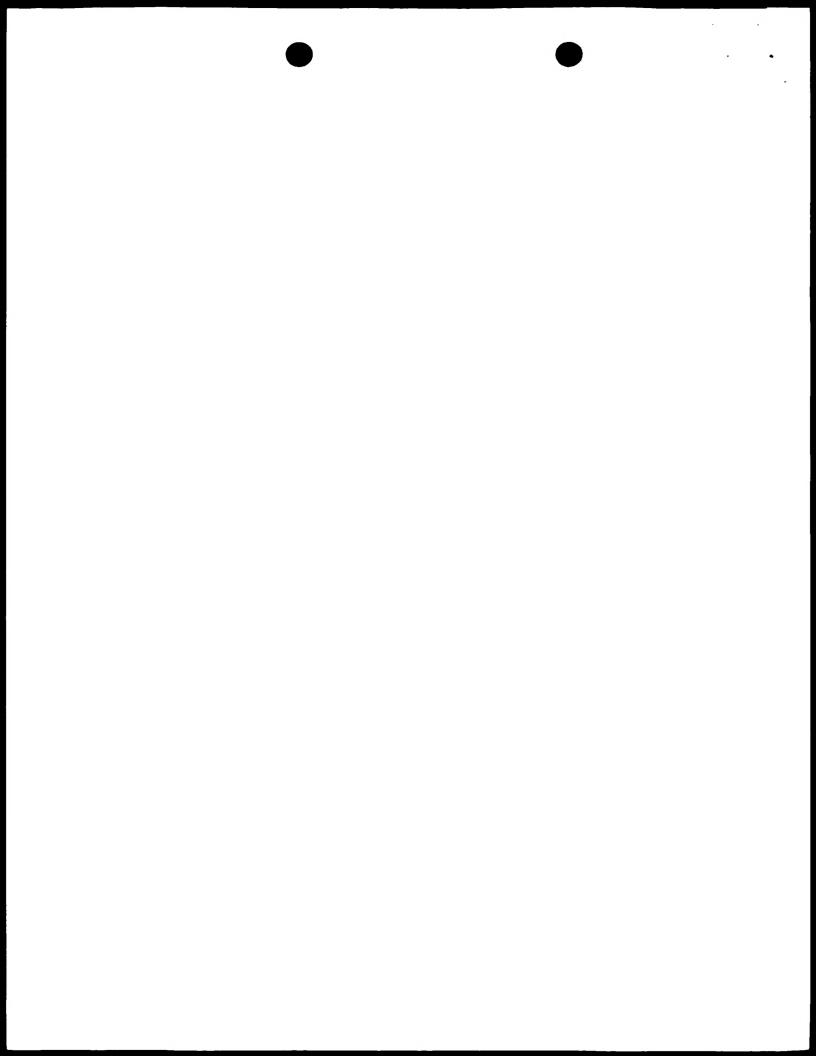
Document 4: JP, 4-277578, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 2 October 1993 (02.10.92); Claim 1 and page 2, left column, lines 43-50

Document 5: JP, 4-96915, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd.), 30 March 1992 (30.03.92; claims and page 2, upper left column, lines 17-20

Document 6: JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chemical Co., Ltd., 15 October 1983 (15.10.83); claims

Document 7: JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd., 22 March 1994 (22.03.94); Claim 1, page 4, right column, line 22 from bottom to line 5 from bottom

Document 8: GB, 1259910, A (Nauchino-Issledovatelsky



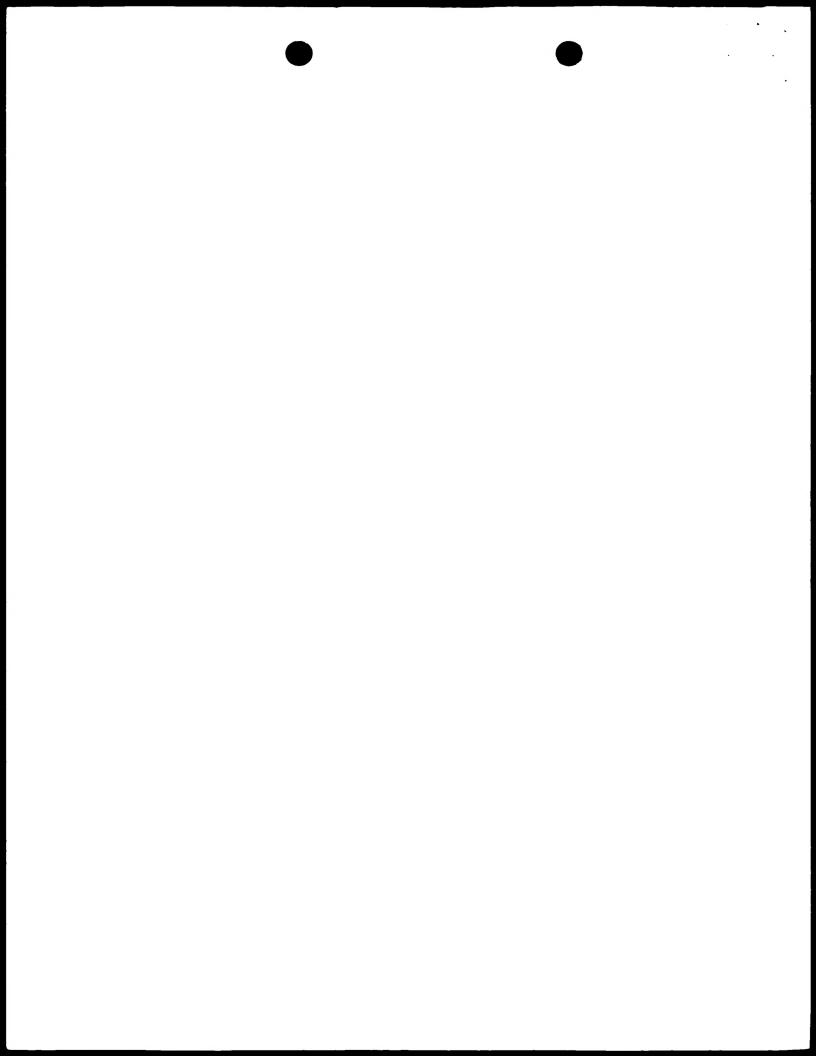
nternational application No

Institut Flasticheskikh Mass, a State
Enterprise, organized and existing under the
Laws of the Union of Soviet Socialist
Republics), 12 January 1972 (12.01.72);
claims, Example 1, Example 3 and Table 1

Document 9: JP, 2-274714, A (Kashima Oil Company, Limited), 8 November 1990 (06.11.90); claims and page 3, lower right column, lines 3-18

Document 10: US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufacturing Company), 26 July 1983 +26.07.83); claims

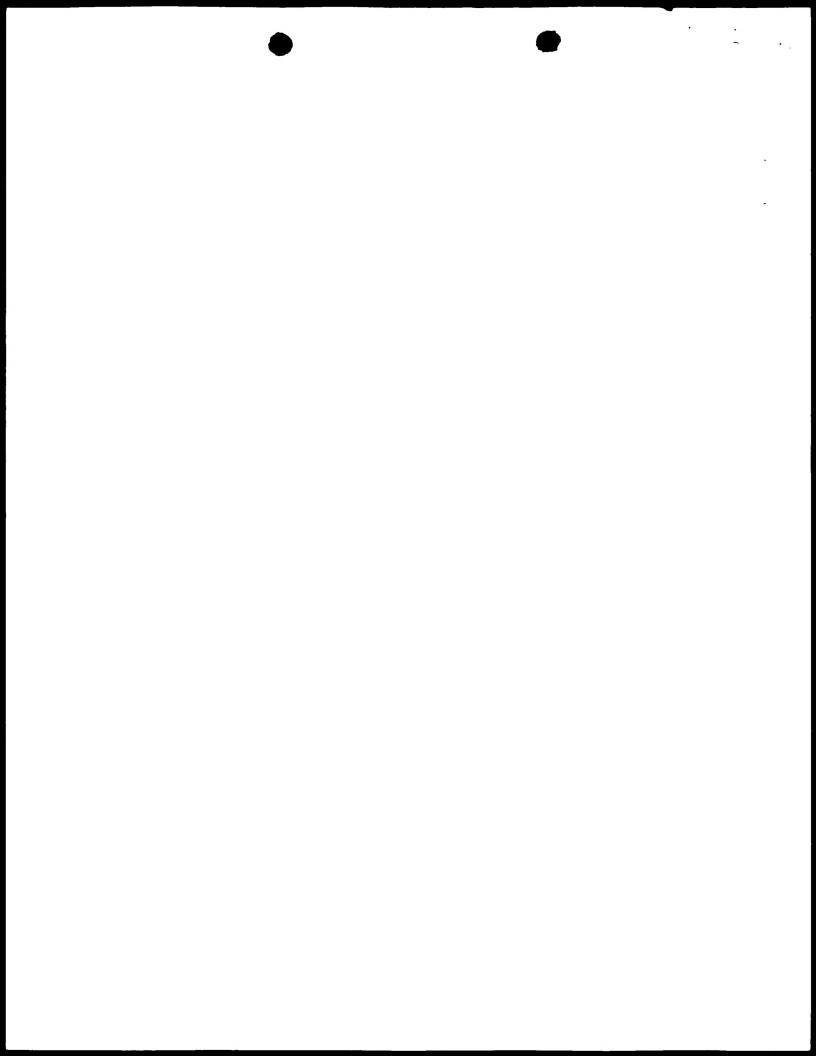
Claim 4 is also not novel, since it is disclosed in Document 2, Document 3, Document 4, Document 5 and Document 8 above.



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

	SIFICATION OF SUBJECT MATTER				
Int		.61/34 .61/34			
		·			
	According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
	S SEARCHED ocumentation searched (classification system followed	by classification symbols			
Int.	.C1 ⁷ C08G 14/00-14 C09D1				
	C08L 61/00-34 C09J1	.61/00-34			
	tion searched other than minimum documentation to the suyo Shinan Koho 1926-1996	extent that such documents are included Jitsuyo Shinan Toroku K			
Koka	ai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000	Toroku Jitsuyo Shinan K			
	lata base consulted during the international search (nam				
	ONLINE	e of data base and, where practicable, sea	ren ternis usea)		
WPI	['] L				
с роси	MENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X	JP, 11-199656, A (NIPPON KAYAKU		1,3		
A	27 July, 1999 (27.07.99),		2,4-6		
	Claim 1 (Family: none)				
х	JP, 4-277575, A (Nippon Steel (Chemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	02 October, 1992 (02.10.92),	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	2,5-6		
	Claims 1 to 2 (Family: none)				
х	JP, 4-277576, A (Nippon Steel (Chemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	02 October, 1992 (02.10.92),		2,5-6		
	Claim 1; page 2, left column, l	ines 42 to 50			
	(Family: none)				
Х	JP, 4-277578, A (Nippon Steel C	Chemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	02 October, 1992 (02.10.92), Claim 1; page 2, left column, l	inog 42 to 50	2,5-6		
	(Family: none)	Times 43 co so			
X A	JP, 4-96915, A (Nippon Steel Ch 30 March, 1992 (30.03.92),	nemical Co., Ltd.),	1,3-4		
A	Claims; page 2, upper left colu	ımn, lines 17 to 20	2,5-6		
	(Family: none)	•	_		
Furthe	r documents are listed in the continuation of Box C.	See patent family annex.			
	categories of cited documents: ent defining the general state of the art which is not	"T" later document published after the inte			
conside	red to be of particular relevance	understand the principle or theory und	erlying the invention		
"E" earlier date	document but published on or after the international filing	"X" document of particular relevance; the considered novel or cannot be considered.			
	ent which may throw doubts on priority claim(s) or which is o establish the publication date of another citation or other	step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the	:		
special	reason (as specified)	considered to involve an inventive ste	p when the document is		
means	ent referring to an oral disclosure, use, exhibition or other	combined with one or more other such combination being obvious to a persor	-		
	ent published prior to the international filing date but later e priority date claimed	"&" document member of the same patent			
	actual completion of the international search	Date of mailing of the international sear			
28 N	November, 2000 (28.11.00)	05 December, 2000 (J5.12.00)		
	nailing address of the ISA/ anese Patent Office	Authorized officer			
Japo					
Facsimile N	0.	Telephone No.			



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

		101/0	P00/05881
C (Continua	tion). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant	t passages	Relevant to claim No.
X A	JP, 58-176210, A (Nippon Steel Chem. Co., Ltd 15 October, 1983 (15.10.83), Claims (Family: none)	1.),	1,3 2,4-6
X A	JP, 6-80766, A (Matsushita Electric Ind. Co., 22 March, 1994 (22.03.94), Claim 1; page 4, right column, the 22 nd line from to the 5 th line from the bottom (Family: no	he bottom	1,3 2,4-6
X A	GB, 1259910, A (NAUCHINO-ISSLEDOVATELSKY INST PLASTICHESKIKH MASS, a State Enterprise, orga and existing under the Laws of the Union of S Socialist Republics), 12 January, 1972 (12.01 Claims; EXAMPLE 1, EXAMPLE 3, TABLE 1 & DE, 2014175, A & FR, 2086766, A	nized Soviet	1,3-4 2,5-6
X A	JP, 2-274714, A (KASHIMA OIL COMPANY, LIMITED 08 November, 1990 (08.11.90), Claims; page 3, lower right column, lines 3 t (Family: none)		1,3 2,4-6
X A	US, 4395498, A (Minnesota Mining and Manufact Company), 26 July, 1983 (26.07.83), Claims (Family: none)	uring	1,3 2,4-6

